



**Titre:** Calcul de la puissance résiduelle du combustible nucléaire dans  
Title: DRAGON

**Auteur:** Thomas Desseaux  
Author:

**Date:** 2006

**Type:** Mémoire ou thèse / Dissertation or Thesis

**Référence:** Desseaux, T. (2006). Calcul de la puissance résiduelle du combustible nucléaire  
dans DRAGON [Mémoire de maîtrise, École Polytechnique de Montréal].  
Citation: PolyPublie. <https://publications.polymtl.ca/7879/>

 **Document en libre accès dans PolyPublie**  
Open Access document in PolyPublie

**URL de PolyPublie:** <https://publications.polymtl.ca/7879/>  
PolyPublie URL:

**Directeurs de  
recherche:**  
Advisors:

**Programme:** Non spécifié  
Program:

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

CALCUL DE LA PUISSANCE RÉSIDUELLE DU COMBUSTIBLE NUCLÉAIRE  
DANS DRAGON

THOMAS DESSEAUX  
DÉPARTEMENT DE GÉNIE PHYSIQUE  
ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

MÉMOIRE PRÉSENTÉ EN VUE DE L'OBTENTION  
DU DIPLÔME DE MAÎTRISE ÈS SCIENCES APPLIQUÉES  
(GÉNIE ÉNERGÉTIQUE)  
AOÛT 2006



Library and  
Archives Canada

Bibliothèque et  
Archives Canada

Published Heritage  
Branch

Direction du  
Patrimoine de l'édition

395 Wellington Street  
Ottawa ON K1A 0N4  
Canada

395, rue Wellington  
Ottawa ON K1A 0N4  
Canada

*Your file    Votre référence*

*ISBN: 978-0-494-19294-8*

*Our file    Notre référence*

*ISBN: 978-0-494-19294-8*

#### NOTICE:

The author has granted a non-exclusive license allowing Library and Archives Canada to reproduce, publish, archive, preserve, conserve, communicate to the public by telecommunication or on the Internet, loan, distribute and sell theses worldwide, for commercial or non-commercial purposes, in microform, paper, electronic and/or any other formats.

The author retains copyright ownership and moral rights in this thesis. Neither the thesis nor substantial extracts from it may be printed or otherwise reproduced without the author's permission.

#### AVIS:

L'auteur a accordé une licence non exclusive permettant à la Bibliothèque et Archives Canada de reproduire, publier, archiver, sauvegarder, conserver, transmettre au public par télécommunication ou par l'Internet, prêter, distribuer et vendre des thèses partout dans le monde, à des fins commerciales ou autres, sur support microforme, papier, électronique et/ou autres formats.

L'auteur conserve la propriété du droit d'auteur et des droits moraux qui protègent cette thèse. Ni la thèse ni des extraits substantiels de celle-ci ne doivent être imprimés ou autrement reproduits sans son autorisation.

---

In compliance with the Canadian Privacy Act some supporting forms may have been removed from this thesis.

Conformément à la loi canadienne sur la protection de la vie privée, quelques formulaires secondaires ont été enlevés de cette thèse.

While these forms may be included in the document page count, their removal does not represent any loss of content from the thesis.

Bien que ces formulaires aient inclus dans la pagination, il n'y aura aucun contenu manquant.

  
**Canada**

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

Ce mémoire intitulé:

**CALCUL DE LA PUISSANCE RÉSIDUELLE DU COMBUSTIBLE NUCLÉAIRE  
DANS DRAGON**

présenté par: DESSEAUX Thomas

en vue de l'obtention du diplôme de: Maîtrise ès sciences appliquées

a été dûment accepté par le jury d'examen constitué de:

M. MARLEAU Guy, Ph.D., président

M. KENNEDY Gregory, Ph.D., membre et directeur de recherche

Mme. VARIN Élisabeth, D.Sc., membre et codirectrice de recherche

M. ZIKOVSKY Lubomir, Ph.D., membre

À Isabelle, petit grain de sel, simple, mais pourtant essentielle différence.

## REMERCIEMENTS

Un grand merci à Élisabeth VARIN pour m'avoir épaulé pendant toute la durée de ma recherche et avoir été une co-directrice de recherche formidablement patiente toujours présente et agréable. Je remercie chaleureusement aussi Guy MARLEAU, pour avoir supportée mes questions, quelquefois bizarroïdes, mais surtout très nombreuses. Merci également à Greg KENNEDY pour sa vision plus pratico-pratique du problème.

À vous aussi, Marin, Jacques, Romain, Richard, Alexis, Abdelhamine, Joël...bref, tout le monde des labs de l'institut, merci pour les conseils, l'aide et simplement le temps passé ensemble.

Et que dire d'Hervé et de David ? Si ce n'est qu'ils ont vraiment été de supers colloqs pendant ces deux années passées à Montréal !

À Sophie, Dan, Dom, Pascal, Anouk, François, Benj, et tous les autres membres de Polyphoto, merci aussi de votre amitié, pour tous ces bon moments et ces heures passé en chambre noire, ou simplement *effouaré* sur les canapé de notre placard à balais.

Je tenais aussi a remercier, évidemment, mes parents et ma famille pour m'avoir donné les moyens d'un tel voyage et le courage d'un tel travail.

Merci enfin, à Héléne SKROBALA de l'ICAM pour sa compréhension dans mes déboires administratifs internationaux, à Micheline LEGAULT, son homologue Québécoise, pour ceux relatif à l'échange, aux gens de l'AECSP et l'AEP, à tous les bénévoles des comités...bref à tous ceux que j'ai croisés ici et qui ont fait ma vie durant deux ans.

## RÉSUMÉ

Ce travail, présenté dans le cadre d'une maîtrise en sciences appliquées, a pour but de calculer la puissance résiduelle dégagée par un combustible de centrale nucléaire à l'issue de son utilisation pour produire de l'énergie dans une centrale thermique.

Cela concerne aussi bien les temps relatifs à la manipulation hors cœur du combustible (très court, court et moyen terme) que ceux de la période de stockage (long terme).

Pour aboutir à ce résultat, nous avons axé nos recherches sur la compréhension des mécanismes aboutissant à la génération de la puissance résiduelle, mais aussi de ceux pouvant avoir un impact notable sur son évaluation finale.

Nous avons ainsi développé des outils de calculs dans la version 3.05 du logiciel DRAGON, puis validé ses outils et comparé nos résultats avec différents cas de référence.

Nous avons également utilisé ces résultats pour comprendre le rôle des différents acteurs affectant cette puissance résiduelle, et illustrer les choix fait par l'industrie électronucléaire dans la gestion des éléments de combustibles usés.

Ce travail est une présentation, utilisation et illustration des concepts de puissance résiduelle dans le combustible irradié sortie d'un réacteur nucléaire. Et, bien que les calculs finaux aient été effectués pour les réacteurs de types CANDU, ses conclusions finales sont parfaitement transposables à d'autres technologies, car d'ordre conceptuel.

## ABSTRACT

This work, toward a Master's in Applied Sciences, aims at calculating the residual power produced by waste fuel from a nuclear power station.

It also deals with the handing of the fuel out of core (very short, short and middle term) as well as for the period of permanent disposal (long term).

In order to reach this goal, we centred our research on the understanding of the mechanisms of short-term residual power generation, and also the mechanisms that could have a significant impact on the ultimate state of the fuel.

We also developed calculation tools for use in version 3.05 of the DRAGON software, validated these tools and compared our results with various reference cases.

We also used these results to understand the role of the various factors contributing to this residual power, and to illustrate the choices made by the nuclear industry for the management of used fuel elements.

This work is a presentation, and an illustration of the concept of residual power in the irradiated fuel taken out of a nuclear reactor. Although the final calculations are made for CANDU type reactors, most of the conclusions are universally valid and are perfectly transposable to other technologies.



## TABLE DES MATIÈRES

DÉDICACE . . . . .	iv
REMERCIEMENTS . . . . .	v
RÉSUMÉ . . . . .	vi
ABSTRACT . . . . .	vii
TABLE DES MATIÈRES . . . . .	viii
LISTE DES TABLEAUX . . . . .	xiii
LISTE DES FIGURES . . . . .	xv
LISTE DES ANNEXES . . . . .	xix
LISTE DES NOTATIONS ET DES SYMBOLES . . . . .	xx
INTRODUCTION . . . . .	1
CHAPITRE 1      CONCEPTS . . . . .	4
1.1    La décroissance radioactive . . . . .	4
1.1.1    Définition . . . . .	4
1.1.2    Application au projet . . . . .	6
1.2    Modèle mathématique de décroissance radioactive . . . . .	8
1.2.1    Loi de désintégration générale . . . . .	8
1.2.2    Equation de champs des noyaux . . . . .	10
1.2.3    Équation de Bateman . . . . .	12
1.2.3.1    Embranchement radioactif . . . . .	12
1.2.3.2    Forme développée . . . . .	13
1.2.3.3    Exemple . . . . .	15

1.3	Calcul de la puissance résiduelle . . . . .	17
1.3.1	Énergie de décroissance . . . . .	17
1.3.1.1	Énergie de décroissance $\alpha$ . . . . .	19
1.3.1.2	Énergie de décroissance $\beta^-$ . . . . .	21
1.3.1.3	Autres modes de décroissance . . . . .	22
1.3.1.4	Les Q-values vis à vis des énergies de décroissance . . . . .	23
1.3.2	L'activité radioactive et la puissance résiduelle . . . . .	25
1.3.2.1	Approximation de puissance résiduelle . . . . .	27
1.4	Conclusion . . . . .	28
CHAPITRE 2	SCHÉMA DE CALCUL . . . . .	30
2.1	Mise en situation . . . . .	30
2.1.1	Introduction aux réacteurs nucléaires . . . . .	30
2.1.1.1	La réaction de fission . . . . .	30
2.1.1.2	Architecture . . . . .	32
2.1.1.3	Filière . . . . .	35
2.1.2	Domaine, méthode et outils d'étude . . . . .	36
2.1.2.1	Zone d'étude . . . . .	36
2.1.2.2	Le suivi des grappes en cœur . . . . .	39
2.1.2.3	Le suivi des grappes hors cœur . . . . .	41
2.1.2.4	Le calcul de la puissance résiduelle . . . . .	41
2.2	Les modules EQV et EDC . . . . .	42
2.2.1	Détails sur EQV . . . . .	43
2.2.2	Détails sur EDC . . . . .	44
2.3	Validation des modules . . . . .	45
2.3.1	Conditions d'étude . . . . .	46
2.3.2	Résultats . . . . .	48
2.3.2.1	Données spécifiques utilisées . . . . .	48
2.3.2.2	Comparaison des modèles de calculs . . . . .	49
2.4	Limites de nos outils . . . . .	53

2.4.1	Limites liées aux données d'entrée . . . . .	53
2.4.2	Limites dues aux chaînes isotopiques . . . . .	54
2.5	Conclusion . . . . .	56

### CHAPITRE 3 EFFET DE LA PUISSANCE EN CŒUR SUR L'INVENTAIRE

	ISOTOPIQUE . . . . .	57
3.1	Introduction au rôle de la puissance en cœur sur l'inventaire isotopique .	57
3.1.1	Présentation du problème . . . . .	57
3.1.2	Hypothèses et questionnement . . . . .	60
3.1.3	Remarque concernant les méthodes de calculs . . . . .	60
3.1.4	Discrétisation . . . . .	64
3.2	Variation du $k_{eff}$ en fonction du niveau de puissance . . . . .	66
3.2.1	Vue d'ensemble . . . . .	66
3.2.2	Couplage des notions de $k_{eff}$ et burnup . . . . .	68
3.3	Étude des isotopes sensibles aux variations de flux neutronique. . . . .	72
3.3.1	Protocole de détermination des isotopes sensibles . . . . .	73
3.3.2	Isotopes sensibles . . . . .	73
3.3.3	Modèle mathématique de groupe . . . . .	77
3.3.3.1	Isotopes à variation linéaire . . . . .	77
3.3.3.2	Isotopes à variation logarithmique ou exponentielle .	82
3.3.3.3	Isotopes à comportement complexe . . . . .	86
3.3.4	Résultats chiffrés . . . . .	90
3.3.5	Influence des historiques de puissance en cœur sur le comporte- ment des grappes hors cœur . . . . .	91
3.3.5.1	Le cas des grappes issues du CANDU-6. . . . .	91
3.3.5.2	Le cas des grappes issues de l'ACR-700 . . . . .	94
3.3.5.3	Contribution isotopique . . . . .	96
3.4	Étude sur le cœur global . . . . .	97
3.4.1	Répartition statistique de puissance . . . . .	98
3.4.2	Résultats . . . . .	100

3.4.3	Synthèse des variations isotopiques globales sur l'ensemble des grappes du cœur. . . . .	102
3.5	Conclusion . . . . .	103
CHAPITRE 4 ISOTOPES CONTRIBUANTS ET AMÉLIORATION DE LA BIBLIOTHÈQUE . . . . . 105		
4.1	Axe de recherche . . . . .	105
4.1.1	Présentation des nouveaux produits de fissions suivis . . . . .	107
4.1.2	Cartographie des produits de fission . . . . .	108
4.1.3	Le cas des actinides . . . . .	113
4.1.4	Le profil de l'isotope contribuant. . . . .	114
4.2	Validation et choix des isotopes à intégrer à notre calcul . . . . .	116
4.2.1	Méthode de validation . . . . .	116
4.2.1.1	Caractéristiques du réacteur . . . . .	116
4.2.1.2	Chaîne de désintégration . . . . .	119
4.2.1.3	Évolution . . . . .	121
4.2.2	Résultat . . . . .	122
4.2.2.1	Puissance en sortie de cœur . . . . .	122
4.2.2.2	Évolution générale hors cœur . . . . .	125
4.2.3	Conclusion partielle . . . . .	129
4.3	Chaîne, données et calcul sous DRAGON . . . . .	130
4.3.1	La filiation isotopique . . . . .	130
4.3.1.1	Construction d'une nouvelle chaîne isotopique . . . . .	130
4.3.1.2	Intégration de la chaîne . . . . .	134
4.3.2	Les énergies de décroissances . . . . .	135
4.3.2.1	Collecte de données . . . . .	135
4.3.2.2	Remarques sur les embranchements lors de décroissances . . . . .	135
4.4	Conclusion . . . . .	137

CHAPITRE 5	L'ÉTUDE DE CAS TYPES DE PUISSANCE RÉSIDUELLE	138
5.1	Évolution globale de la puissance résiduelle	138
5.1.1	Allure générale	138
5.1.2	Comparaison	140
5.1.2.1	Influence de la puissance en cœur : bilan.	144
5.1.3	Source de production d'énergie	147
5.2	Étude en détail par période de temps (court et moyen terme)	149
5.2.1	Court et très court terme (7 premières années)	150
5.2.2	Paranthèse : l'impact de la puissance de combustion	158
5.2.3	Synthèse : Classification des contributions	158
5.3	La puissance résiduelle sur le long terme	160
5.3.1	Allure générale de la puissance résiduelle	161
5.3.2	Les plutoniums	162
5.3.2.1	Le plutonium 236	162
5.3.2.2	Les autres plutoniums	163
5.4	Conclusion	164
CONCLUSION		166
RÉFÉRENCES		171
ANNEXES		177

## LISTE DES TABLEAUX

TABLEAU 1.1	Décomposition de la famille exemple. . . . .	16
TABLEAU 2.1	Géométrie des grappes de combustible CANFLEX. . . . .	36
TABLEAU 2.2	Conditions thermodynamiques de calculs. . . . .	47
TABLEAU 2.3	Isotopes pour lequel le calcul d'évolution de concentration a été effectué sous DRAGON(présents dans la bibliothèque WIMS). . .	47
TABLEAU 2.4	Noms et caractéristiques des isotopes utilisés. . . . .	48
TABLEAU 2.5	Évolutions de puissances résiduelles selon les méthodes de cal- cul utilisées, sur la premiere année. . . . .	50
TABLEAU 2.6	Différentes évolutions de puissances résiduelles selon les méthodes de calcul utilisées, de 5 à 60 ans. . . . .	51
TABLEAU 2.7	Noms des isotopes de la bibliothèqueWIMS sélectionnés par EQV.	55
TABLEAU 2.8	Noms des isotopes de la bibliothèqueWIMSD4 sélectionnés par EQV. . . . .	55
TABLEAU 3.1	Choix des puissances . . . . .	62
TABLEAU 3.2	Calcul de la différence de $k_{eff}$ en fonction du burnup. . . . .	69
TABLEAU 3.3	Isotopes sensibles dans un CANDU-6. . . . .	74
TABLEAU 3.4	Isotopes sensibles dans un ACR-700. . . . .	75
TABLEAU 3.5	Différence d'activité pour un CANDU-6 . . . . .	93
TABLEAU 3.6	Différence d'activité pour un ACR . . . . .	95
TABLEAU 3.7	Isotopes responsables de la grande partie de l'activité des grappes en sortie de coeur et sur les cinquante (50) années suivantes. . .	96
TABLEAU 3.8	Catégorie de puissance dans un coeur d'ACR-700. . . . .	99
TABLEAU 3.9	Comparaison par isotope de la différence de concentration pour un ACR-700 entre le cas statistique et le cas nominal. . . . .	100
TABLEAU 3.10	Isotopes dont le suivi de grappe en coeur à la puissance nominale sous-estime la valeur finale de plus de 1%. . . . .	102
TABLEAU 4.1	Tableau des isotopes à étudier selon M.Etherington. . . . .	108

TABLEAU 4.2	Tableau des isotopes à étudier selon le rapport concernant ORIGEN-S . . . . .	108
TABLEAU 4.3	Tableau des isotopes à suivre selon la lecture de la table isotopique.	113
TABLEAU 4.4	Résultat de la contribution isotopique en sortie de coeur. . . . .	123
TABLEAU 4.5	Énergie de rayonnement gamma ( $\gamma$ ) pour le $^{133}_{54}\text{Xe}$ . . . . .	136
TABLEAU 5.1	Ordre de contribution des différents isotopes lors du refroidissement des grappes de combustibles. . . . .	159
TABLEAU II.1	Choix des puissances . . . . .	178
TABLEAU II.2	Tableau récapitulatif des concentrations isotopiques à différents niveaux de puissance dans un CANDU-6. . . . .	179
TABLEAU II.3	Tableau récapitulatif des concentrations isotopiques à différents niveaux de puissance dans un ACR-700. . . . .	180
TABLEAU III.1	Entrées de /decay/ et sous-répertoire . . . . .	184
TABLEAU III.2	Exemple de sous-répertoire {/result/} . . . . .	186
TABLEAU III.3	Exemple de sous-répertoire RESULTAT . . . . .	187
TABLEAU III.4	Contenu du répertoire {/decayvalue/} dans /decay/ . . . . .	188
TABLEAU III.5	Structure de EQV . . . . .	192
TABLEAU III.6	Structure de ( <b>desceqv</b> ) . . . . .	193
TABLEAU III.7	Structure de EDC . . . . .	195
TABLEAU III.8	Structure de ( <b>descdc</b> ) . . . . .	195
TABLEAU IV.1	Énergie de décroissance radioactive utilisée pour nos calculs. . .	198
TABLEAU IV.2	Ratio de décroissance radioactive utilisée pour nos calculs. . .	202

## LISTE DES FIGURES

FIGURE 1.1	Schéma de chaîne de désintégration . . . . .	11
FIGURE 1.2	Exemple d'une famille de décroissance . . . . .	15
FIGURE 1.3	Énergie de liaison par nucléon . . . . .	19
FIGURE 1.4	Puissance résiduelle selon le modèle de Way et Wigner (Présenté par Paul Reuss) . . . . .	27
FIGURE 2.1	Schéma d'une grappe de combustible CANFLEX. . . . .	37
FIGURE 2.2	Architecture du module EQV . . . . .	43
FIGURE 2.3	Architecture du module EDC . . . . .	45
FIGURE 3.1	Section d'un coeur de réacteur CANDU-6. . . . .	58
FIGURE 3.2	Cellule élémentaire dans un réacteur CANDU-6 (à droite) ou ACR-700 (gauche). . . . .	62
FIGURE 3.3	Géométrie d'une grappe à 37 crayons . . . . .	63
FIGURE 3.4	Erreur sur le $k_{eff}$ générée par l'approximation linéaire entre 1500 et 8000 $\frac{MW_j}{t}$ sur un CANDU-6 . . . . .	65
FIGURE 3.5	coefficient de multiplication effectif pour un CANDU-6 : . . . .	67
FIGURE 3.6	coefficient de multiplication effectif pour un ACR-700 : . . . .	67
FIGURE 3.7	Variation du coefficient de multiplication effectif pour un CANDU- 6 en fonction du burnup . . . . .	69
FIGURE 3.8	coefficient de multiplication effectif pour un ACR-700 sur les premiers MWj/t : . . . . .	71
FIGURE 3.9	Évolution de la concentration en $^{236}_{94}Pu$ dans un ACR-700 et dans un CANDU-6 : . . . . .	76
FIGURE 3.10	Variation de la concentration en $^{135}_{53}I$ dans un CANDU-6 selon le niveau de puissance : . . . . .	78
FIGURE 3.11	Variation de la concentration finale en $^{135}_{53}I$ dans un CANDU-6 selon le niveau de puissance : . . . . .	79
FIGURE 3.12	Évolution de la concentration en $^{156}_{63}Eu$ dans un CANDU-6 : . .	80
FIGURE 3.13	Évolution de la concentration en $^{141}_{59}Pr$ dans un CANDU-6 : . .	80



FIGURE 3.14	Évolution de la concentration en $^{239}_{93}\text{Np}$ dans un CANDU-6 : . . .	81
FIGURE 3.15	Évolution de la concentration en $^{135}_{54}\text{Xe}$ dans un CANDU-6 : . . .	83
FIGURE 3.16	Variation de la concentration finale en $^{135}_{54}\text{Xe}$ dans un CANDU-6 selon le niveau de puissance : . . . . .	84
FIGURE 3.17	Variation de la concentration finale en $^{241}_{95}\text{Am}$ dans un CANDU-6 selon le niveau de puissance : . . . . .	85
FIGURE 3.18	Évolution de la concentration en $^{241}_{95}\text{Am}$ dans un CANDU-6 : . . .	86
FIGURE 3.20	Concentration en $^{149}_{62}\text{Sm}$ dans un CANDU-6 selon le niveau de puissance. . . . .	88
FIGURE 3.21	Variation de la concentration finale en $^{149}_{62}\text{Sm}$ dans un ACR-700 selon le niveau de puissance. . . . .	88
FIGURE 3.22	Concentration en $^{149}_{62}\text{Sm}$ dans un ACR-700 selon le niveau de puissance. . . . .	89
FIGURE 3.19	Variation de la concentration finale en $^{149}_{62}\text{Sm}$ dans un CANDU-6 selon le niveau de puissance. . . . .	90
FIGURE 3.23	Variation d'activité pour une grappe sortie d'un CANDU-6 selon le niveau de puissance sous lequel elle fut brûlée : . . . . .	92
FIGURE 3.24	Contribution des 5 isotopes sélectionnés selon le niveau de puis- sance en sortie de CANDU-6 : . . . . .	96
FIGURE 3.25	Répartition de la puissance des grappes d'un ACR-700 (par groupe de variations de $40 \frac{\text{kW}}{\text{grappe}}$ autour d'une moyenne) : . . . . .	98
FIGURE 3.26	Répartition de la puissance modélisée pour les grappes d'un ACR- 700 : . . . . .	99
FIGURE 4.1	Différence de puissances résiduelles entre l'évaluation de DRA- GON utilisant la bibliothèque WIMS et celle du modèle simplifié	106
FIGURE 4.2	Rendement de fission en fonction du nombre de masse. . . . .	109
FIGURE 4.3	Carte des produits de fission à bas nombres de masse. . . . .	110
FIGURE 4.4	Carte des produits de fission à hauts nombres de masse. . . . .	112
FIGURE 4.5	Carte des actinides. . . . .	114

FIGURE 4.6	Comparaison des schémas de désintégration responsable d'une forte contribution en puissance résiduelle . . . . .	115
FIGURE 4.7	Comparaison de différents modèles de chaleur résiduelle sur les 50 jours suivants la sortie du cœur . . . . .	126
FIGURE 4.8	Comparaison de différents modèles de chaleur résiduelle sur les deux premières années suivant la sortie du cœur . . . . .	126
FIGURE 4.9	Comparaison de différents modèles de chaleur résiduelle de deux à sept ans suivant la sortie du cœur . . . . .	127
FIGURE 4.10	Comparaison de différents modèles de chaleur résiduelle de sept à cinquante ans suivant la sortie du cœur . . . . .	129
FIGURE 4.11	Exemple de distribution des rendements de fission. . . . .	131
FIGURE 5.1	Évolution générale de la puissance résiduelle après la sortie du cœur selon nos calculs . . . . .	139
FIGURE 5.2	Puissance résiduelle selon nos calcul et des mesures sur les 50 premiers jours . . . . .	141
FIGURE 5.3	Différence entre nos calculs et des mesures sur les 50 premiers jours . . . . .	141
FIGURE 5.4	Différence entre nos calculs et une modélisation éprouvée . . .	143
FIGURE 5.5	Decay curve of the radionuclides in used fuel[Wiles, 2002] . . .	144
FIGURE 5.6	Évolution de la puissance résiduelle suivant les niveaux de combustion selon nos calculs. . . . .	145
FIGURE 5.7	Différence d'estimation entre la puissance résiduelle d'une grappe statistiquement représentative du cœur et celle du cas nominal selon nos calculs. . . . .	146
FIGURE 5.8	Détail des contributions en puissance résiduelle selon les types de rayonnement. . . . .	147
FIGURE 5.9	Contribution en puissance des différents isotopes durant l'année suivant la sortie du cœur . . . . .	151
FIGURE 5.10	Évolution de la contribution en puissance des différents isotopes à court terme . . . . .	152

FIGURE 5.11	Proportion de la contribution du praseodyme 144 à la puissance résiduelle totale. . . . .	154
FIGURE 5.12	Évolution de la contribution en puissance des différents isotopes à moyen terme . . . . .	156
FIGURE 5.13	Évolution de la proportion de contributions à la puissance résiduelle selon le type de rayonnement. . . . .	157
FIGURE 5.14	Différences de puissances résiduelles suivant le niveau de combustion en cœur, par rapport au cas nominal. . . . .	157
FIGURE 5.15	Puissance résiduelle d'une grappe sur le très long terme. . . . .	161
FIGURE 5.16	Puissance résiduelle due aux plutoniums à très long terme. . . . .	163
FIGURE I.1	Schéma de conversion des données DRAGON. . . . .	177

## LISTE DES ANNEXES

ANNEXE I	CONVERSION . . . . .	177
ANNEXE II	DIFFÉRENCE DE CONCENTRATION EN SORTIE DE CŒUR SUIVANT LA PUISSANCE EN CŒUR, PAR RAPPORT AU CAS NOMINAL. . . . .	178
ANNEXE III	NOTICES DE DRAGON . . . . .	183
III.1	Nouveaux formats . . . . .	183
III.1.1	Contenue de la liste chaîné de type /decay/ . . . . .	183
III.1.1.1	Le répertoire racine de /decay/ . . . . .	184
III.1.1.2	Le sous-répertoire de données /contrib/ dans /DETAIL- CONTRI/ . . . . .	187
III.1.1.3	Le sous-répertoire de données /decayvalue/ dans /decay/	188
III.1.2	Le fichier DV . . . . .	190
III.2	Nouveaux modules . . . . .	192
III.2.1	Le module EQV . . . . .	192
III.2.1.1	Données d'entrée pour EQV . . . . .	193
III.2.2	Le module EDC . . . . .	194
III.2.2.1	Données d'entrée pour EDC . . . . .	195
ANNEXE IV	FICHIERS D'ENTRÉE . . . . .	198
IV.1	Les données du fichier DV . . . . .	198
IV.2	Le fichier MicE6M . . . . .	204

## LISTE DES NOTATIONS ET DES SYMBOLES

### – Liste des sigles utilisés dans le présent rapport :

ACR-700 : Advance CANDU Reactor

CANDU-6 : CANadian Deuterium-Uranium

EPM : École Polytechnique de Montréal

IGN : Institut de Génie Nucléaire

$k_{eff}$  : coefficient de multiplication effectif

### – Notation isotopique :

Nous avons utilisé la notation habituelle pour les différents isotopes cité dans notre rapport, à savoir :  ${}^A_ZX$  ou "X" est le symbole de l'isotope, "A" son nombre de masse et "Z" son nombre de charge. Afin d'alléger certaine formule, nous n'avons pas toujours spécifié le nombre de charge (propriété intrinsèque de l'élément)

### – Symboles mathématique utilisé :

$\sigma_a^A X$  : Section efficace microscopique d'absorption de l'isotope  ${}^A_ZX$

$\sigma_f^A X$  : Section efficace microscopique de fission de l'isotope  ${}^A_ZX$

$\Sigma_f$  : Section efficace macroscopique de fission. En fait cette valeur est une forme condensé de  $\Sigma_f(E, t) =$

$$\sum_{F=\text{isotopes fissiles}} N^F(t) \sigma_f^F(E)$$

$Y_f^A X$  : Rendement de fission aboutissant à l'isotope  ${}^A_ZX$ .

$\lambda^A X$  : constante de désintégration de l'isotope  ${}^A_ZX$ .

## INTRODUCTION

Produire de l'énergie à partir de combustible nucléaire génère une quantité non négligeable de déchets de haute activité. Cette notion de *déchets radioactifs* est souvent reliée à celle de leur stockage, et aux problématiques qui y sont rattachées.

L'Institut de Génie Nucléaire (IGN) de l'École Polytechnique de Montréal (EPM) développe depuis plusieurs années le couple de logiciels DONJON-DRAGON pour effectuer des calculs simulant le comportement d'un coeur de réacteur nucléaire et l'évolution de son combustible lors de l'exploitation.[Varin et al., 2002, Hebert et al., 1994b] Bien que ces logiciels aient la capacité de calculer l'évolution du combustible au repos<sup>1</sup>, cette possibilité n'a jamais été exploitée, ni surtout validée.

Le but initial de ce projet était donc d'utiliser ces outils pour simuler l'évolution de combustible irradié sur le long terme<sup>2</sup> après sa sortie du coeur. Mais nous désirions aussi développer, tester et valider un module de calcul permettant d'évaluer la puissance résiduelle d'un tel combustible sur de longues périodes de temps, ceci afin de permettre la simulation de son comportement dans différentes situations de stockage.

Pour atteindre ces objectifs, nous avons utilisé les données isotopiques et les concentrations en sortie de coeur issues de calculs de cellule. Plusieurs questionnements sont alors apparues :

- Incertitude quant aux concentrations isotopiques issues d'un unique calcul de DRAGON, là où le coeur entier contient une diversité importante de cellules aux conditions de fonctionnement toutes différentes.
- Limite de la bibliothèque isotopique utilisée, simplifiée pour ne suivre, en coeur, que les isotopes à l'influence neutronique importante.
- Difficultés liées à la validation de notre modèle de simulation.

---

<sup>1</sup>Comprendre, sans flux neutronique

<sup>2</sup>Jusqu'à 100000 ans.

Dans ce rapport, nous nous attacherons à présenter les différents chemins ayant conduit à la résolution de ces problèmes.

Nous nous sommes intéressé, à la fois, à la production d'énergie hors coeur d'une grappe de combustible, mais aussi à l'influence que pouvait avoir sur cette production l'historique de combustion en coeur. La première étape fut donc consacrée à la simulation d'évolution isotopique de grappes sous différentes puissances en coeur et à leurs évolutions hors coeur. En parallèle de cette étude, nous avons programmé les modules EQV<sup>3</sup> et EDC<sup>4</sup> pour DRAGON, pour nous permettre d'évaluer la puissance résiduelle. Les résultats nous ont conduits à réorienter notre recherche sur l'étude de la bibliothèque isotopique de DRAGON car celle-ci ne semblait pas adaptée aux calculs de puissance résiduelle.

Nous avons donc dû ensuite rectifier et compléter des données de bibliothèques utilisées par DRAGON, avant de pouvoir appliquer notre travail à des cas concrets.

Nos études concernent essentiellement les réacteurs CANDU-6<sup>5</sup>. Ce sont des réacteurs de type Pressure Heavy-Water Reactor (PHWR), c'est-à-dire qu'ils sont modérés et refroidis à l'eau lourde. Contrairement aux Réacteur à Eau Pressurisée (REP), il y a une séparation physique entre caloporteur et modérateur du fait de la construction en tubes de forces choisie pour permettre un rechargement en marche du réacteur. Nous avons également fait quelques simulations concernant la version évoluée du réacteur CANDU-6, à savoir l'Advance CANDU Reactor (ACR-700).

Dans une première partie de ce rapport nous aborderons les principaux concepts physiques et mathématiques qui nous ont servi à comprendre et à modéliser les phénomènes étudiés. Ensuite nous présenterons les modules EDC et EQV ainsi que leurs premiers tests de validation. Puis nous étudierons en détail les conditions expérimentales et leurs impacts sur les résultats de nos calculs, notamment l'influence du flux neutronique sur les

---

<sup>3</sup>*Evaluation of Q-Values*

<sup>4</sup>*Energy Decay Calculation*

<sup>5</sup>CANadian Deuterium-Uranium

concentrations isotopiques et la puissance résiduelle. Enfin viendront la recherche des isotopes contribuant à la puissance résiduelle et la description de leur implantation dans le logiciel DRAGON. Toutes ces étapes permettront de présenter en détail l'ensemble des notions requise dans le dernier chapitre où nous étudions la puissance résiduelle d'un combustible issu d'un réacteur CANDU-6, et tous les mécanismes associés.



## CHAPITRE 1

### CONCEPTS

Dans un premier temps, nous allons chercher à définir les notions utiles à la compréhension de notre domaine d'étude. Vous retrouverez donc ici, après une rapide introduction à la radioactivité, les modélisations mathématiques des phénomènes observés dans le temps, dans un matériau nucléaire.

#### 1.1 La décroissance radioactive

##### 1.1.1 Définition

La notion de radioactivité a été mise à jour à la fin du  $XIX^{\text{ème}}$  siècle par les efforts conjoints de Henri Becquerel et de Pierre et Marie Curie, cette découverte leur a d'ailleurs valu le prix Nobel de physique en 1903<sup>1</sup>. La radioactivité est cette particularité des noyaux, dits radioactifs, de chercher à atteindre leur niveau d'énergie minimum (la stabilité) par émission de particules ou entités physiques tels que des électrons, et des rayonnements.

Il existe différents types de radioactivités :

- La radioactivité  $\gamma$ , première découverte avec les rayons X (en 1895, par Wilhelm Conrad Röntgen, bien qu'alors on ne soupçonnait pas la radioactivité en elle-même) et nommée en premier lieu phosphorescence<sup>2</sup>. Cette découverte est intimement liée au progrès, peu de temps avant, de la photographie, puisque Henry

---

<sup>1</sup>Le prix nobel fut alors attribué pour la découverte de la radioactivité, l'isolement du radium et du polonium. Marie Curie obtint un second prix Nobel, en chimie, pour des travaux ultérieurs sur ces mêmes éléments.

<sup>2</sup> La fluorescence est un autre phénomène, qui concerne le nuage électronique et non le noyau et nécessite une excitation préalable de l'atome

Becquerel utilisait ce support pour démontrer la présence de rayonnements invisibles à l'œil nu et non induits par une excitation externe.

La radioactivité  $\gamma$  concerne les atomes passant d'un état excité à un état fondamental. Elle fait généralement suite à une autre forme de radioactivité qui a justement laissé le noyau dans un état excité. La transition isomérique fonctionne sur le même principe, mais met en jeu des demi-vies bien plus longues car l'état excité de l'atome est métastable (on parle alors d'un isomère). [Bonche, 2002]

- La radioactivité  $\alpha$  correspond à l'émission d'un atome d'hélium ionisé. En effet cet atome, appelé aussi particule  $\alpha$ , est dit doublement magique car il comprend 2 neutrons et 2 protons, il est extrêmement stable<sup>3</sup>. [Magill et Galy, 2005b] La découverte de ces particules fut décisive : Rutherford les utilisa pour bombarder une feuille d'or et démontrer ainsi l'existence du noyau dans la structure atomique.
- la radioactivité  $\beta$  correspond à l'émission d'un électron ( $e^-$ ) par désintégration d'un neutron du noyau en proton (on parle alors de réactivité  $\beta^-$ ), ou d'un positron ( $e^+$ ) par la réaction inverse<sup>4</sup>. Dans notre étude, c'est la forme de radioactivité la plus fréquente puisqu'elle concerne souvent les produits de fission, mais la capture électronique est également possible<sup>5</sup>.
- Il existe de nombreuses autres formes de radioactivité plus exotiques : émission d'un neutron, d'un proton, ou d'atomes ionisés plus lourds ( $^{14}_6C$  ou  $^{24}_{10}Ne$  par exemple), mais en raison de leurs fréquences statistiques moins élevées, nous n'avons pas étudiés ni dosés leurs effets ici.

Ainsi la chimie a-t-elle été révolutionnée, la notion de noyau (confirmée définitivement par Rutherford en 1911) s'est imposée, et les scientifiques du monde entier ont réalisés que la stabilité atomique n'était qu'un cas particulier.

<sup>3</sup>L'extrême stabilité de l'hélium se visualise bien sur le classique graphique d'énergie de liaison moyenne par nucléon (figure 1.3). On y rencontre en effet un pic d'énergie au niveau de l'hélium 4.

<sup>4</sup>Le neutron étant plus lourd que le proton, la réaction  $\beta^-$  est la seule possible à l'état libre (demi-vie de 11,5 minutes), elle aboutit alors à la création d'un atome d'hydrogène.

<sup>5</sup>La capture électronique correspond, en simplifiant, à une décroissance  $\beta^+$ , où un électron d'une basse couche électronique frôlant de trop près le noyau, se fait happer et permet, par l'apport d'énergie qu'il symbolise, la transformation d'un proton du noyau en neutron. Il n'y a pas d'émission de positron, car, conceptuellement, celui-ci s'est annihilé au contact de l'électron. Par contre, il y a émission d'un neutrino et, éventuellement, d'un photon pour évacuer l'énergie résiduelle.

Plus tard, la découverte du neutron et la notion de radioactivité artificielle<sup>6</sup> ouvrirent le champ à la découverte de milliers d'isotopes, et de nouveaux éléments.

[Magill et Galy, 2005b]

Dans ce rapport, nous allons essentiellement nous intéresser à cette radioactivité artificielle, nous allons parcourir la table de ces milliers d'éléments et tenter de doser cette instabilité atomique.

### 1.1.2 Application au projet

C'est dans les réacteurs nucléaires que l'homme produit, aujourd'hui, de grandes quantités d'isotopes radioactifs très variés.

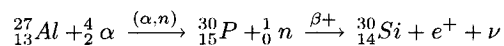
Les réacteurs civils, permettant la production d'électricité par échauffement d'un fluide caloporteur comme de simples machines à vapeur, produisent essentiellement 3 types d'isotopes radioactifs :

- Les noyaux lourds créés par absorption neutronique dans l'uranium suivit par diverses décroissances.
- Les produits de fission issus, comme leur nom l'indique, de la fission de l'uranium ou du plutonium . Il s'agit d'isotope ayant principalement des nombres de masse autour de 100 ou 140, mais la probabilité d'obtenir l'un ou l'autre des nucléides est spécifique à l'atome fissionné. C'est une des données nucléaires de l'élément, et l'on parle en général d'un rendement de fission (ou *Yield* en anglais)

La fission d'un atome d'uranium 235 par exemple peut aboutir à la création d'un

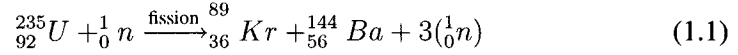
---

<sup>6</sup> On parle de radioactivité artificielle lorsqu'entrent en jeu des isotopes qui n'existent pas ou plus (en raison de leur demie-vie trop courte) dans la nature. Sa découverte est due à Frédéric et Irène Joliot-Curie qui, en 1933, bombardèrent au moyen de particules  $\alpha$  des atomes d'aluminium 27, ce qui donna :

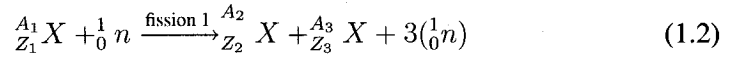


Ainsi, alors qu'ils s'attendaient à obtenir du phosphore 31, stable, ils virent perler sur leur plaque d'aluminium un liquide qui faisait crépiter le compteur Geiger : du phosphore 30 (demie-vie de 2 minutes 29,88 secondes).

atome de krypton 89 (probabilité d'environ 3,43%) et d'un autre de barium 144 (avec une probabilité de 3,97%) en donnant la réaction décrite par l'équation suivante.



Il est intéressant de remarquer que la probabilité que la réaction de fission n'est pas le produit des rendements de fissions des atomes concernés, car les événements ne sont pas indépendants.



$$\text{Proba}_{(\text{fission 1})} \neq \text{Yield}_{Z_2}^{A_2}\text{X} \cdot \text{Yield}_{Z_3}^{A_3}\text{X} \quad (1.3)$$

En fait, il existe une multitude de combinaisons isotopique d'atomes fils issus d'une réaction de fission, mais la création d'un isotope  ${}_{Z_3}^{A_3}\text{X}$  dépend directement des nucléons restant après le partage de l'isotopes père  ${}_{Z_1}^{A_1}\text{X}$  et l'utilisation d'une partie de ces nucléons pour reconstituer  ${}_{Z_2}^{A_2}\text{X}$ .

- Les produits d'activation du réacteur. Par exemple, dans un réacteur CANDU on retrouve notamment l'eau tritiée, née de l'absorption d'un neutron par une molécule d'eau lourde tel que présenté à l'équation ci dessous où  $T$  est un atome de tritium ( ${}^3_1\text{H}$ ) et  $D$  un de deutérium ( ${}^2_1\text{H}$ ).



Mais les matériaux activé par le bombardement neutronique entrent également dans cette catégorie, tel que le zirconium, le dioxygène...

Le troisième type de matériaux radioactif est essentiellement gênant en terme de radioprotection (l'eau tritiée, présentée ici en exemple, passe très facilement dans le corps), mais ce sont les deux premiers types qui nous intéressent dans cet étude.

Lorsqu'un atome décroît par l'un des modes cités précédemment (sous-chapitre 1.1.1),

son énergie totale<sup>7</sup> diminue. Cependant, l'énergie globale de la réaction est conservée. Ce qui signifie que les entités physiques émises (particules, rayonnement, neutrino) emportent avec elles une énergie de masse qui leur est propre et une énergie cinétique qui est une caractéristique de l'isotope ayant déchu. Cette énergie cinétique est ensuite déposée par collision dans le milieu environnant, c'est-à-dire sous forme d'excitation moléculaire donc de chaleur.

Notre modèle mathématique, décrit par la suite, se base sur ces notions d'énergies cinétiques particulières à chaque isotope et de transformation de cette même énergie cinétique en chaleur par agitation moléculaire.

## 1.2 Modèle mathématique de décroissance radioactive

### 1.2.1 Loi de désintégration générale

*« La loi de désintégration radioactive est une loi universelle qui s'applique à tous les modes de désintégration et qui stipule que la probabilité de désintégration d'un noyau par unité de temps est proportionnelle à la concentration de ce noyau. »* .[Marleau, 2004a]

Cette définition se traduit mathématiquement par l'équation différentielle 1.5 (ou sa forme temporelle 1.6), où  $\lambda$  est la constante de désintégration et s'exprime en  $\frac{\text{désintégrations}}{\text{s}}$  et  $N_A(t_0)$  est la concentration initiale de l'isotope A. C'est ainsi que la notion de radioactivité devient synonyme de celle de décroissance radioactive : dans le temps, les

---

<sup>7</sup>Ce que nous appelons ici *énergie totale* de l'atome est la somme de son énergie cinétique et de son énergie de masse.

isotopes radioactifs tendent à disparaître et à s'approcher de la stabilité.

$$\frac{dN_A(t)}{dt} = -\lambda N_A(t) \quad (1.5)$$

$$N_A(t) = N_A(t_0)e^{-\lambda(t-t_0)} \quad (1.6)$$

Il convient ici de définir la notion de demi-vie et le lien qu'elle entretient avec la constante de désintégration :

*« La demie-vie est le temps requis pour que la concentration d'un noyau atteigne la moitié de sa valeur initiale, il est noté  $t_{\frac{1}{2}}$ . On parle aussi quelquefois de période radioactive »*

À partir de l'équation 1.6, nous avons :

$$N(t_{\frac{1}{2}}) = N_0 e^{-\lambda(t_{\frac{1}{2}})} = \frac{N_0}{2} \quad (1.7)$$

$$t_{\frac{1}{2}} = \frac{\ln(2)}{\lambda} \quad (1.8)$$

La demie-vie est définie hors flux neutronique et hors d'une chaîne de filiation, c'est une propriété intrinsèque à chaque nucléide. Mais dans un coeur de réacteur, on peut être amené à définir la notion de « *demie-vie équivalente* » qui prend également en compte les disparitions causées par absorption neutronique. Cette dernière s'applique notamment aux nucléides ayant une interaction neutronique forte comme par exemple l'iode 135.[Marleau, 2004a]

Par extension, on peut calculer le temps requis à une concentration pour atteindre un certain ratio  $\frac{A}{B}$  de la concentration initiale, nous noterons cette valeur  $t_{\frac{A}{B}}$  et la calculons en généralisant l'équation 1.8 :

$$t_{\frac{A}{B}} = \frac{\ln(\frac{B}{A})}{\lambda} \quad (1.9)$$

D'où

$$\frac{t_{\frac{A}{B}}}{t_{\frac{1}{2}}} = \frac{\ln(\frac{B}{A})}{\ln(2)} \quad (1.10)$$

En appliquant ces formules, nous pouvons déduire quelques principes généraux à la décroissance radioactive, totalement indépendants de la constante de désintégration considérée et donc de l'isotope étudié :

- Il restera 60% de la concentration initiale après 0,74 fois la demie-vie.
- Il faudra environ 6,6 périodes pour qu'il ne reste que 1% de la concentration initiale.
- On estime que la presque totalité des représentants (90%) d'un isotope donné auront disparu après une durée de 3 fois la demie vie.

### 1.2.2 Equation de champs des noyaux

Le modèle mathématique présenté à l'équation 1.5 est un modèle simplifié. Il ne prend en compte que la destruction de l'isotope A par décroissance et non sa possible création par un parent (On parle d'isotope *fils* lorsque cet isotope est engendré par la désintégration d'un autre isotope, alors qualifié de *père*<sup>8</sup>).

L'équation de champ d'un noyau est en fait une généralisation de l'équation de décroissance 1.5 ou l'on écrit deux types de termes :

- Ceux de création (précédés d'un signe positif)
- Ceux de destruction (précédés d'un signe négatif)

Ainsi nous aurions :

$$\frac{dN_A(t)}{dt} = - \left[ \sum \left( \begin{array}{c} \text{Termes de} \\ \text{destruction} \end{array} \right) \right] + \left[ \sum \left( \begin{array}{c} \text{Termes de} \\ \text{création} \end{array} \right) \right] \quad (1.11)$$

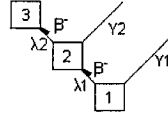
Les familles isotopiques font intervenir des chaînes complètes de filiations complexes possédant parfois de nombreux branchements. Il convient alors d'écrire chacun des chemins de l'isotope de départ vers l'isotope final pour en calculer ses concentrations à des temps d'évolution différents.

---

<sup>8</sup>Les anglais utilisent la même notion de filiation, mais au féminin.

Prenons l'exemple, simple, d'une chaîne liant trois isotopes. Deux d'entre eux (1 et 2) étant des produits de fission radioactifs : créés par la fission d'atomes plus lourds selon un certain ratio  $Y_1$  ou  $Y_2$ , et détruit uniquement par désintégration radioactive selon leurs constantes  $\lambda_1$  et  $\lambda_2$ . Le second isotope est ainsi produit, à la fois par la désintégration radioactive du premier, et directement depuis la fission. Le troisième isotope quant à lui, est leur fils stable : il n'est produit que par la désintégration successive des deux premiers. La figure 1.1 présente schématiquement cette famille en utilisant les méthodes de classification des tables de nucléides classiques telles que celles de GENERAL ELECTRIC.[Baum et al., 2003] Dans ces tables, le diagramme a pour abscisse le nombre de neutrons et pour ordonnée celui des protons.[Magill et Galy, 2005b] Lorsque l'on remonte d'une case selon une droite de coefficient directeur "-1" (vers le haut et la gauche) on effectue une décroissance  $\beta^-$  par exemple.

FIGURE 1.1 Schéma de chaîne de désintégration



Les formes différentielles des équations de désintégration sont proposées à l'équation 1.12 pour l'isotope 1 et 1.13 pour l'isotope 2.[Marleau, 2004a]

$$\frac{d(N_1(t))}{dt} = -\lambda_1 N_1(t) + Y_1^f \Sigma^f \Phi \quad (1.12)$$

$$\frac{d(N_2(t))}{dt} = -\lambda_2 N_2(t) + \lambda_1 N_1(t) + Y_2^f \Sigma^f \Phi \quad (1.13)$$

Pour aboutir à ces équations, nous avons fait plusieurs approximations :

- Le coefficient  $\Sigma^f(E)$  rassemble en fait toutes les sections efficaces macroscopiques

telles que :  $\Sigma^f(E, t) = \sum_{F=\text{isotopes fissiles}} N_F(t) \sigma_F^f(E)^9$ .

<sup>9</sup>Où  $\sigma_F^f$  est la section efficace microscopique de fission de l'isotope F.



- Le produit  $\Sigma^f \Phi$  est en fait la simplification de  $\int_0^\infty \Sigma^f(E) \Phi(E, t) dE$  rendu possible par l'hypothèse d'un flux de neutrons ( $\Phi(E, t)$ ) constant en fonction du temps et monocinétique. Les mêmes hypothèses sont également considérées pour les concentrations des isotopes fissiles (quasiment constantes en fonction du temps).

### 1.2.3 Équation de Bateman

La forme temporelle généralisée des équations d'évolutions a été démontrée par récurrence par le mathématicien H.BATEMAN en 1910.[Magill et Galy, 2005a]

#### 1.2.3.1 Embranchement radioactif

Pour cela, nous devons définir le concept d'embranchement dans une chaîne de désintégration radioactive. Il faut savoir que certains isotopes peuvent décroître de différentes manières, et donc leurs isotopes fils et les énergies libérées lors de chaque décroissance sont inégales. La création des isotopes fils est fixée par la loi des grands nombres et est donc une probabilité ramenée en pourcentage. Par exemple, l'euporium 152 peut décroître à 72, 1% en gadolinium 152 par capture électronique, ou à 27, 9% en samarium 152 par décroissance  $\beta^-$ .

Considérons un nucléide qui, comme dans le cas de l' $^{152}_{63}\text{Eu}$ , possède 2 modes de décroissances gouvernées par des constantes de désintégrations  $\lambda_1$  et  $\lambda_2$  respectivement vers ses 2 fils, nous aurions :

$$\frac{dN_0}{dt} = -\lambda_{0 \rightarrow 1} N_0(t) - \lambda_{0 \rightarrow 2} N_0(t) \quad (1.14)$$

$$= -(\lambda_{0 \rightarrow 1} + \lambda_{0 \rightarrow 2}) N_0(t) \quad (1.15)$$

$$N_0(t) = N_0 e^{-(\lambda_{0 \rightarrow 1} + \lambda_{0 \rightarrow 2})t} \quad (1.16)$$

C'est donc la somme des constantes de désintégration partielles (noté  $\lambda_{0 \rightarrow 1}$  par exemple,

lorsqu'elles concernent la transition de l'isotope 0, vers l'isotope 1) qui constitue la constante de décroissance totale, notée  $\lambda_0$ , de l'isotope.

On définit alors le rapport de branchement comme la division de chacune de ces valeurs  $\lambda_i$  par la valeur globale de décroissance  $\lambda_0$ . Il est parfois exprimé en pourcentage, comme dans notre exemple, et noté  $BR$ .

$$BR_1 = \frac{\lambda_{0 \rightarrow 1}}{\lambda_0} \quad (1.17)$$

Nous retrouvons ainsi très facilement les demie-vies liées à chaque mode de décroissance évoqué précédemment dans le cas de l'euprium 152 :

- Le branchement vers le gadolinium 152 se produit avec un ratio de 72,1% :

$$\lambda_{63}^{152}Eu,_{64}^{152}Gd = \frac{721}{1000} \lambda_{63}^{152}Eu \quad (1.18)$$

$$= 1,68891.10^{-09} \text{ secondes}^{-1} \quad (1.19)$$

- Le branchement vers le samarium 152 se produit avec un ratio de 27,9% :

$$\lambda_{63}^{152}Eu,_{62}^{152}Sm = \frac{279}{1000} \lambda_{63}^{152}Eu \quad (1.20)$$

$$= 6,53545.10^{-10} \text{ secondes}^{-1} \quad (1.21)$$

La somme des deux constantes de désintégrations vaut alors  $2,34245.10^{-09} \text{ secondes}^{-1}$ , qui est la valeur habituellement admise pour l'euprium 152.

### 1.2.3.2 Forme développée

L'équation 1.6 est indépendante du type de désintégration. Elle n'est caractérisée que par la notion de constante de désintégration étendue aux rapports de branchements.

Ainsi une formule simple est-elle utilisable pour calculer les concentrations des différents éléments d'une chaîne de décroissance radioactive. L'équation 1.22 est écrite en

utilisant les conventions présentées plus haut. La valeur  $S_i$  correspond à une source de production de l'isotope  $i$ , il peut s'agir de fission d'un atome plus lourd, ou de production par décroissance depuis un autre mode ; bien que, dans ce dernier cas, une méthode plus simple de calcul existe, nous la présenterons ci-après.

$$N_n(t) = \sum_{i=1}^n \left[ \left( \prod_{j=1}^{n-1} \lambda_{j \rightarrow j+1} \right) \sum_{j=i}^n \left( \frac{N_i(0)e^{-\lambda_j t} + \frac{S_i}{\lambda_j}(1 - e^{-\lambda_j t})}{\prod_{\substack{p=i \\ p \neq j}}^n (\lambda_p - \lambda_j)} \right) \right] \quad (1.22)$$

Cette équation est très générale, elle se simplifie notamment en ignorant les termes de sources, mais il faut alors passer par une astuce mathématique pour l'utiliser avec des chaînes de décroissances radioactives, notamment lorsqu'il y a convergence, c'est à dire un isotope fils produit depuis plusieurs pères par différentes voies de décroissances radioactives

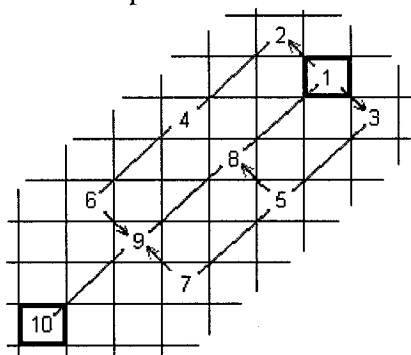
Il suffit de décomposer le schéma de décroissance en autant de chaînes simples, sans ramifications, qu'il y a de possibilités de cheminements pour aller de l'isotope de départ de la famille à l'isotope final, stable. Puis on applique la formule 1.23 pour évaluer les concentrations de l'isotope  $i$  à l'isotope  $n$  sur chaque chaîne, avant de ré-additionner les concentrations obtenues en prenant garde à ne pas additionner deux fois les concentrations issues de différentes chaînes, mais en fait équivalentes.

$$N(t) = \prod_{j=1}^{n-1} \lambda_{j \rightarrow j+1} \sum_{j=i}^n \frac{N_i(0)e^{-\lambda_j t}}{\prod_{\substack{p=i \\ p \neq j}}^n (\lambda_p - \lambda_j)} \quad (1.23)$$

### 1.2.3.3 Exemple

Nous pouvons présenter maintenant un exemple. Prenons une mole d'atomes qui peuvent décroître selon le schéma 1.2. Sur le schéma, un lien fleché de 2 cases vers la gauche et 2 vers le bas représente une décroissance  $\alpha$ . Alors qu'un lien d'une (1) case vers la droite et d'une (1) autre vers le bas indique une décroissance  $\beta^-$ , un lien dans le sens opposé représente une capture électronique ou une décroissance  $\beta^+$ .

FIGURE 1.2 Exemple d'une famille de décroissance

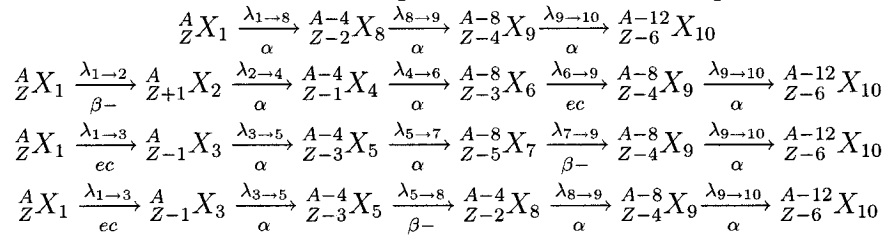


La figure 1.2 permet de visualiser les différents chemins pour aboutir de l'isotope numéro 1 à l'isotope numéro 10. Pour calculer les équations d'évolution de chacun des isotopes, nous avons dû séparer les différentes chaînes possibles. Il en existe 4 que nous présentons à la table 1.1. Cette méthode permet d'utiliser la seconde équation de Bateman (1.23) facilement sur chacune des chaînes.

Dans toutes nos équations, les constantes de désintégrations totales considérées sont notées  $\lambda_i$  pour les isotopes  $i$ , et  $\lambda_{i \rightarrow j}$  lorsqu'il s'agit de constante de désintégration partielle. Les isotopes, eux, sont nommés par leur numéro  $X_i$ , éventuellement leur nombre de masse  $A$  et celui de charge  $Z$  sont spécifiés autour du symbole selon la méthode classique de notation isotopique (i.e :  ${}^A_Z X_i$ ).

À partir des différentes chaînes, il a été très facile de réécrire les équations de Bateman

TABLEAU 1.1 Décomposition de la famille exemple.



et ainsi de trouver les concentrations des isotopes, selon les chaînes considérées. Par exemple, nous présentons, des équations 1.24 à 1.27, la forme développée de l'équation 1.23 des trois premiers représentants de la chaîne intégrant les isotopes 1, 8, 9, 10, c'est à dire la première des 4 chaînes présentées à la table 1.1<sup>10</sup>.

$$N_1(t) = N_1(0)e^{-\lambda_1 t} \quad (1.24)$$

$$N_8(t) = N_1(0)\lambda_{1 \rightarrow 8} \left[ \frac{e^{-\lambda_1 t}}{\lambda_8 - \lambda_1} + \frac{e^{-\lambda_8 t}}{\lambda_1 - \lambda_8} \right] \quad (1.25)$$

$$N_9(t) = N_1(0)\lambda_{1 \rightarrow 8}\lambda_{8 \rightarrow 9} \left[ \frac{e^{-\lambda_1 t}}{(\lambda_8 - \lambda_1)(\lambda_9 - \lambda_1)} + \frac{e^{-\lambda_8 t}}{(\lambda_1 - \lambda_8)(\lambda_9 - \lambda_8)} \right. \quad (1.26)$$

$$\left. + \frac{e^{-\lambda_9 t}}{(\lambda_1 - \lambda_9)(\lambda_8 - \lambda_9)} \right] \quad (1.27)$$

Il est intéressant de remarquer que l'application de la formule de Bateman se base essentiellement sur le rang, dans la chaîne de désintégration, d'un isotope donné et non sur sa numérotation choisie, finalement, par l'utilisateur.

Ainsi l'isotope 8 est-il créé directement depuis l'isotope 1, il est alors second sur la chaîne partielle de filiation et son équation de concentration développée est celle présentée à l'équation 1.25. Mais si l'on suit le chaînage passant par l'isotopes 5 (voir figure 1.2), il est alors quatrième et son équation est plus complexe. La dernière étape

<sup>10</sup>En raison de la récurrence et de l'inutile complexité de la forme développée de ces équations, nous n'avons pas présenté ici l'équation du quatrième chaînon : l'isotope 10.

est donc celle de l'assemblage.

Ainsi l'équation 1.28 présente la forme temporelle de l'équation d'évolution de l'isotope  ${}_{Z-2}^{A-4}X_8$  dont nous parlions précédemment qui peut être créé, à la fois par une décroissance  $\alpha$  directe depuis l'isotope  ${}^AX_1$  ou via une sous-chaîne de décroissance passant par  ${}^AX_{-1}X_3$  et  ${}^{A-4}_{Z-3}X_5$ .

$$N_8(t) = N_1(0)\lambda_{1\rightarrow 8} \left[ \frac{e^{-\lambda_1 t}}{\lambda_8 - \lambda_1} + \frac{e^{-\lambda_8 t}}{\lambda_1 - \lambda_8} \right] + N_1(0)\lambda_{1\rightarrow 3}\lambda_{3\rightarrow 5}\lambda_{5\rightarrow 8} \left[ \frac{e^{-\lambda_1 t}}{(\lambda_3 - \lambda_1)(\lambda_5 - \lambda_1)(\lambda_8 - \lambda_1)} + \frac{e^{-\lambda_3 t}}{(\lambda_1 - \lambda_3)(\lambda_5 - \lambda_3)(\lambda_8 - \lambda_3)} + \frac{e^{-\lambda_5 t}}{(\lambda_1 - \lambda_5)(\lambda_3 - \lambda_5)(\lambda_8 - \lambda_5)} + \frac{e^{-\lambda_8 t}}{(\lambda_1 - \lambda_8)(\lambda_3 - \lambda_8)(\lambda_5 - \lambda_8)} \right] \quad (1.28)$$

Grâce à cette méthode, et si nous connaissons les enchaînements aboutissant à un isotope  $i$  donnée depuis un isotopes de départ 1, nous pouvons relativement facilement<sup>11</sup> évaluer la concentration de cet isotope en fonction de la concentration initiale de celui d'origine ( $N_1(0)$ ) et du temps écoulé.

### 1.3 Calcul de la puissance résiduelle

#### 1.3.1 Énergie de décroissance

Lors d'une décroissance radioactive, la règle de conservation de l'énergie totale doit être vérifiée. Or l'énergie de masse de l'isotope fils est inférieure à celle de l'isotope père additionné de celle de l'entité physique émise (électron, gamma...). Cette différence d'énergie est en fait réparti entre l'énergie cinétique des différents termes de l'équation de décroissance et leurs énergies de masses.

---

<sup>11</sup>Car les équations deviennent vite très lourdes à manipuler...

Nous regrouperons ces différentes sources d'énergie sur le terme *énergie de décroissance*. Cette énergie dépend du noyau père, du noyau fils et du type de décroissance. Prenons par exemple une décroissance  $\alpha$  telle que décrite à l'équation suivante :

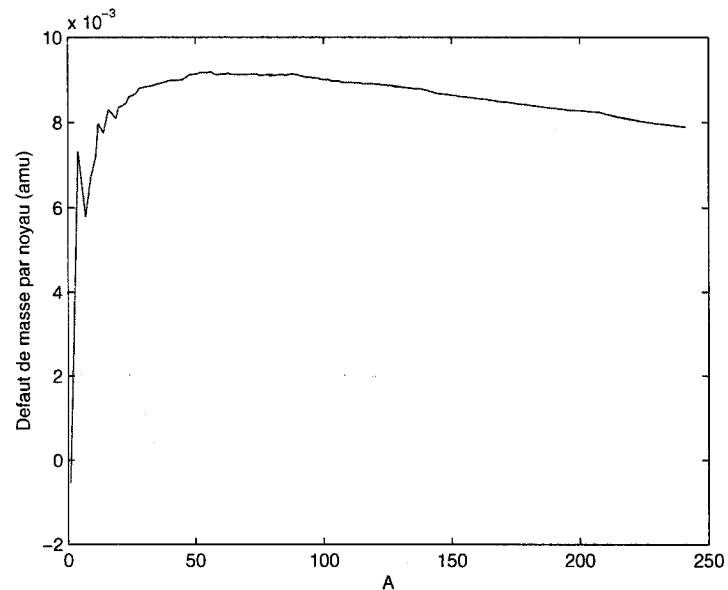


Il convient ici de faire une parenthèse concernant la masse des noyaux atomiques. Nous savons que l'énergie de masse de chacun des isotopes intervenant dans la réaction est inférieure à la somme de l'énergie des nucléons le constituant, car il y a contribution d'un terme d'énergie de liaison de valeur négative (symbolisant ainsi le côté lié des nucléons). La masse d'un atome est toujours inférieure à la somme des masses des nucléons qui le compose si ceux-ci étaient considérés à l'état libre. Ceci est dû à l'énergie de liaison des nucléons qui peut être considéré comme une énergie de masse négative. Cette énergie de liaison dépend de l'isotope considéré, à cause notamment des différents arrangements nucléaire similaire au notion de couche électronique utilisé pour le modèle du nuage du même nom. La notion de défaut de masse et directement liée à celle de défaut d'énergie par l'équation d'Einstein, ainsi avons nous présenté ici à la figure 1.3 l'énergie de liaison en guise de présentation du défaut de masse. Nous remarquons que la valeur de cette contribution est différente pour tous les isotopes.

Ainsi la masse des atomes n'est-elle pas une fonction directe et simple du nombre et type de nucléides qu'ils contiennent. Mais cette variation d'énergie de liaison est primordiale pour comprendre l'intérêt qui réside dans la fission de noyaux lourds : en cassant des noyaux on parvient à lier plus fortement les nucléons de noyaux fils entre eux et ainsi permettre le relâchement de l'énergie précédemment utilisée pour maintenir la stabilité nucléaire puisqu'elle est désormais inutile.

La majeure partie de cette énergie peut être évaluée en calculant la différence qui existe entre la masse obtenue en sommant celles des noyaux fils et celles des neutrons émis par la réaction, par rapport à celle du noyau de départ additionnée du neutron inci-

FIGURE 1.3 Énergie de liaison par nucléon



dent. Par équivalence entre masse et énergie, nous pouvons traduire cette différence de masse en une valeur d'énergie libérée par la réaction.

De la même manière, lorsque nous nous intéressons à une décroissance radioactive, nous observons le déplacement d'un équilibre atomique vers un point plus stable de la table des nucléides. Ce déplacement permet lui aussi un relâchement d'énergie. Suivant le type de décroissance, ce relâchement se calcule de différentes manières.

[Magill et Galy, 2005c]

#### 1.3.1.1 Énergie de décroissance $\alpha$

Le bilan énergétique de l'équation 1.29 est présenté ci-dessous (1.32), pour obtenir cette équation, nous avons simplement utilisé l'équation d'Einstein d'équivalence masse-



énergie :  $E = mc^2$ .

$$\frac{Q_\alpha}{c^2} = M({}_Z^A P) - [M({}_{Z-2}^{A-4} D^{2-}) + m({}_2^4 \alpha)] \quad (1.30)$$

$$= M({}_Z^A P) - [M({}_{Z-2}^{A-4} D) + 2m_e + m({}_2^4 \alpha)] \quad (1.31)$$

$$= M({}_Z^A P) - M({}_{Z-2}^{A-4} D) - M({}_2^4 He) \quad (1.32)$$

Prenons un exemple pour illustrer ce propos : soit la décroissance radioactive depuis l'uranium 238 vers le thorium 234. En exprimant les masses en unité de masse atomique, unité équivalente à 1 douzième de la masse du carbone 12, nous obtenons l'équation suivante. Il faut noter que l'*alter-ego* de la masse atomique, le *MeV* (méga-électron-volt)<sup>12</sup> est une véritable unité d'énergie, il est directement relié à la masse par l'équation d'Einstein et la constante de vitesse de la lumière. Le passage vers les *MeV* dans notre équation se fait donc simplement en multipliant la valeur de masse par 931,49404380).

$$\frac{Q_\alpha}{c^2} = M({}_{92}^{238} U) - M({}_{90}^{234} Th) - M({}_2^4 He) \quad (1.33)$$

$$= (238,050788) - (234,043601) - (4,002603) \quad (1.34)$$

$$= 0,004584u \quad (1.35)$$

Ainsi pouvons nous convertir cette valeur en énergie :

$$E_{\text{total } \alpha} \cong 4,26997 MeV \quad (1.36)$$

Cette énergie est ensuite répartie entre la particule  $\alpha$  et le noyau fils. Selon l'équation

---

<sup>12</sup>Un *MeV*, ou Mega électron volt, correspond à  $1,6021917 \cdot 10^{-13} J$  (joules)

de conservation de la quantité de mouvement et de l'énergie :

$$E_{\alpha} = E_{\text{total}} \alpha \frac{M({}_{Z-2}^{A-4}D)}{M({}_{Z-2}^{A-4}D) + M({}_2^4He)} \quad (1.37)$$

$$E_{{}_{Z-2}^{A-4}D} = E_{\text{total}} \alpha \frac{M({}_2^4He)}{M({}_{Z-2}^{A-4}D) + M({}_2^4He)} \quad (1.38)$$

Soit dans notre exemple :

$$Ec_{\alpha} \simeq 4,26997 \cdot \left( \frac{234,043601}{238,050788} \right) \simeq 4,19809 \text{ MeV} \quad (1.39)$$

$$E_{C_{90}^{234}Th} \simeq 4,26997 \cdot \left( \frac{4,002603}{238,050788} \right) \simeq 0,07180 \text{ MeV} \quad (1.40)$$

Nous verrons par la suite l'application qui peut être faite de ces équations.

### 1.3.1.2 Énergie de décroissance $\beta^-$

De la même façon que précédemment, nous pouvons donner le bilan énergétique de la décroissance  $\beta^-$ .

$${}_Z^AX \xrightarrow{\beta^-} {}_{Z+1}^AX + e^- + \bar{\nu} \quad (1.41)$$

$$\frac{Q_{\beta^-}}{c^2} = M({}_Z^AP) - [M([{}_{Z+1}^AD]^+) + m_{\beta^-} + m_{\bar{\nu}}] \quad (1.42)$$

$$= M({}_Z^AP) - [M({}_{Z+1}^AD) - m_e + m_{\beta^-} + m_{\bar{\nu}}] \quad (1.43)$$

$$= M({}_Z^AP) - M({}_{Z+1}^AD) \quad (1.44)$$

Évaluons par cette méthode l'énergie de décroissance du carbone 14 vers le azote  $^{14}_{7}\text{N}$  :

$$\frac{Q_{\beta-}}{c^2} = M(^{14}_6\text{C}) - M(^{14}_7\text{N}) \quad (1.45)$$

$$= (14,003242) - (14,00307) \quad (1.46)$$

$$= 0,000168u \quad (1.47)$$

Ainsi pouvons nous convertir cette valeur en énergie :

$$E_{\text{total } \beta-} \cong 0,1565 \text{ MeV} \quad (1.48)$$

Cette énergie est ensuite répartie entre la particule  $\beta$ , l'anti-neutrino et le noyau fils. Les équations sont exactement les mêmes que celles présentées aux numéros 1.37 et 1.38. Mais les masses de la particule  $\beta$  (un électron) et de l'anti-neutrino sont si faibles par rapport au noyau, que l'on peut considérer en première approximation, qu'elles emportent toute l'énergie de décroissance avec elles. La présence de l'anti-neutrino, quasiment indétectable car n'interagissant avec quasiment aucune matière, génère une incertitude quant à l'énergie réellement emportée par le rayonnement  $\beta$  que l'on estime à environ 30%. Cette incertitude empêche de se servir des masses des atomes pour évaluer de façon précise l'énergie de décroissance, car l'anti-neutrino n'interagissant avec aucun atome, l'énergie cinétique qu'il emporte ne sera pas redéposée dans la matière et ne contribuera pas à la puissance résiduelle.

### 1.3.1.3 Autres modes de décroissance

Des démonstrations calquées sur celles présentées précédemment peuvent être facilement menées pour obtenir les relations suivantes :

- Émission  $\beta+$  :  $\frac{Q_{\beta+}}{c^2} = M(^A_Z\text{P}) - M(^A_{Z-1}\text{D}) - 2m_e$

---

<sup>13</sup>Cette relation est un classique, utilisée en archéologie pour dater les objets jusqu'à -50000 ans

- Émission  $\gamma$  et transition isomérique<sup>14</sup> :  $E_\gamma = E^*$  (simplement l'énergie d'excitation de noyau, ou la différence de masse entre les deux isomères)

Dans ces différents cas, comme cela fut démontré pour la décroissance  $\beta$ , la particule ou entité physique émise est tellement légère qu'elle emporte avec elle presque la totalité de l'énergie cinétique.

Il existe d'autres types de décroissance, mais elles n'ont pas d'application dans DRAGON, nous ne nous attarderons donc pas à les décrire ici.

#### 1.3.1.4 Les Q-values vis à vis des énergies de décroissance

En fait, le calcul de différence de masses abouti à ce que l'on appelle les Q-Values, mais cette valeur n'est pas l'exacte énergie de décroissance relachée par les isotopes.

En effet, une étude approfondie de la réaction de décroissance de l'uranium 238 en thorium 234 (réaction utilisée en exemple à la section 1.3.1.1) montre qu'elle peut, en fait, se produire à différentes énergies :

- Une décroissance  $\alpha$  directe vers le thorium 234 à 76,8% avec une énergie de 4,199 *MeV* pour la particule  $\alpha$  telle que prédite par le modèle.
- Une décroissance  $\alpha$  vers un état excité du thorium 234 à 23,2% avec une énergie de 4,150 *MeV*, les 0,049 *MeV* restant étant relâchés par rayonnement  $\gamma$  et recul du noyau fils.

Notre évaluation de l'énergie de décroissance se fait sur un très grand nombre de nucléides<sup>15</sup>. Dans l'idée de calculer la puissance résiduelle en fonction du type de rayonnement, nous pouvons nous contenter d'une moyenne pondérée de ces énergies de décroissance pour chacun d'eux. Le rayonnement  $\alpha$  de notre exemple emporte ainsi en moyenne 4,1869 *MeV*. Ce résultat est inférieur à la valeur d'énergie de décroissance calculée à l'équation 1.39. Ce calcul correspond en fait au cas idéal, où la décroissance se fait en

<sup>14</sup>Dans ces équations, les astérisques symbolisent l'état excité de l'atome

<sup>15</sup>Petit rappel : une mole vaut  $6,0221367 \cdot 10^{23}$  atomes

amenant le noyau au niveau fondamental grâce en totalité à l'émission  $\alpha$  en tout temps. De la même manière, il faudra pondérer la valeur d'énergie relâché par rayonnement  $\gamma$  dans notre exemple.

Ce comportement se retrouve souvent, quelque soit le mode de décroissance<sup>16</sup>, il complexifie grandement le calcul d'énergie de décroissance moyenne. La méthode de calcul de l'énergie de décroissance par la variation de masses (Q-Value) évalue correctement l'énergie relâchée, mais elle surestime forcément l'énergie résiduelle observée car ne prend pas en compte la *manière* dont l'énergie est libérée dans l'environnement<sup>17</sup>. Il ne peut donc s'agir que d'une première méthode d'approximation de la puissance résiduelle.

Cette approximation est négligeable dans le cas de la décroissance  $\alpha$ , mais présente une forte incertitude avec la décroissance  $\beta$ , notamment concernant la quantité d'énergie emportée par le neutrino.

En effet le neutrino n'interagissant pas avec la matière, il emporte avec lui l'énergie de décroissance qui n'est donc pas redéposé autour du combustible. Pour clarifier la situation, nous avons introduit les notions de

- Puissance résiduelle réelle (qui tiens compte de l'énergie totale relâchée par le matériau nucléaire)
- Puissance résiduelle utile (qui est celle transmise à l'environnement)

Lors de l'étude d'un cas réel de gestion du combustible irradié, c'est la notion de puissance résiduelle utile qui nous intéresse, car c'est celle qui influence l'entourage de la grappe en faisant fi de l'énergie emportée par les neutrinos. Pour correctement évaluer cette puissance utile, il nous faudra détailler les énergies des différentes décroissances que nous voulons suivre dans notre calcul. Ceci nous permettra aussi de connaître la

---

<sup>16</sup>En contre-exemple : la réaction du carbone 14, utilisée ici pour illustrer la décroissance  $\beta$ , qui ne décroît que selon un seul mode, et pour qui la méthode présentée ici évalue très exactement l'énergie de décroissance radioactive, pourvu que les valeurs de masses atomiques soient précises.

<sup>17</sup>Elle reflète le cas idéal, celui restituant le maximum d'énergie à l'environnement.

répartition des contributions en puissances résiduelles suivant les types rayonnements.

### 1.3.2 L'activité radioactive et la puissance résiduelle

La notion de radioactivité, nous l'avons vu précédemment, est une notion statistique : au bout d'un temps donnée, on suppose la transmutation d'une proportions des atomes. Un élément macroscopique tel qu'une grappe de combustible nucléaire réunit des milliards de milliards d'atomes<sup>18</sup>, nous pouvons donc utiliser les principes de la loi des grand nombres et définir une nouvelle notion : celle de l'activité, modélisée par l'équation 1.49.

$$A = N_i \times \lambda_i \quad (1.49)$$

L'activité est une simple multiplication de la concentration d'un isotope donnée par sa constante de désintégration, il s'agit en fait d'une mesure de l'impact qu'a la décroissance du radio-isotope sur l'environnement. Ainsi, un isotopes ayant une grande constante de désintégration (donc une courte demie-vie), aura-t-il une activité importante même si sa concentration est faible. On peut comprendre cette notion facilement en remarquant que l'événement « *désintégration de l'atome X* » à d'autant plus de chance de se produire durant un temps donnée si la demie-vie, période de temps au bout de laquelle la moitié des atomes de départ ont évolué, est réduite.

Un ensemble d'atome d'un isotope donné est donc plus ou moins actif c'est à dire qu'il évolue plus ou moins rapidement et en plus ou moins grande proportion, suivant la demie-vie de l'isotope en question et sa concentration initiale. Cette notion est extrêmement importante pour le calcul de puissance résiduelle, car on comprendra que la puissance résiduelle déjà directement reliée au relâchement d'énergie par un atome au cours de sa décroissance, l'est aussi à l'activité car cette dernière symbolise le taux auquel les atomes transmutent.

---

<sup>18</sup>Nous rappelons qu'une mole d'atome comprend  $6,02205 \cdot 10^{23}$  atomes

Si nous prenons un ensemble d'isotopes connus, dont chacun est représenté par une population de concentration donnée, la densité de puissance totale sera tout simplement la somme des puissances (ramenées au volume) relatives à chacun des isotopes, elles-mêmes calculées en couplant activités et énergies de décroissances :

$$\frac{Puissance}{Volume} = \sum_{i=1}^{N_I} N_i \times E_i \times \lambda_i \quad (1.50)$$

Dans cette équation,  $N_I$  est le nombre d'isotopes considéré pour le calcul. Les autres données sont exprimées dans les unités suivantes :

- $\frac{atomes}{cm^3}$  pour la concentration  $N_i$  de l'isotope  $i$ ,
- $MeV$  pour l'énergie de décroissance  $E_i$  de l'isotope  $i$ ,
- $\frac{1}{s}$  pour la constante de désintégration  $\lambda_i$  de l'isotope  $i$ ,

À partir de cela, l'équation dimension donnera simplement :

$$\left[ \frac{atomes}{cm^3} \right] \times [MeV] \times \left[ \frac{1}{s} \right] \equiv \left[ \frac{MeV}{cm^3 \times s} \right] \quad (1.51)$$

Cette densité de puissance peut être facilement convertie en  $\frac{W}{cm^3}$  au moyen d'un facteur de conversion des méga-électronvolts en joules <sup>12</sup>, les watts étant eux-même des joules par secondes. Lorsque nous présenterons une application concrète de ce calcul, nous parlons de puissance en appliquant la formule à un volume donnée de matière.

Ainsi, en connaissant simplement les différentes concentrations isotopiques à un temps donné, nous pouvons calculer, grâce à cette formule, la puissance résiduelle d'une grappe. À condition d'avoir correctement évalué les énergies de décroissance tel que cela fut expliqué à la section 1.3.1.4.

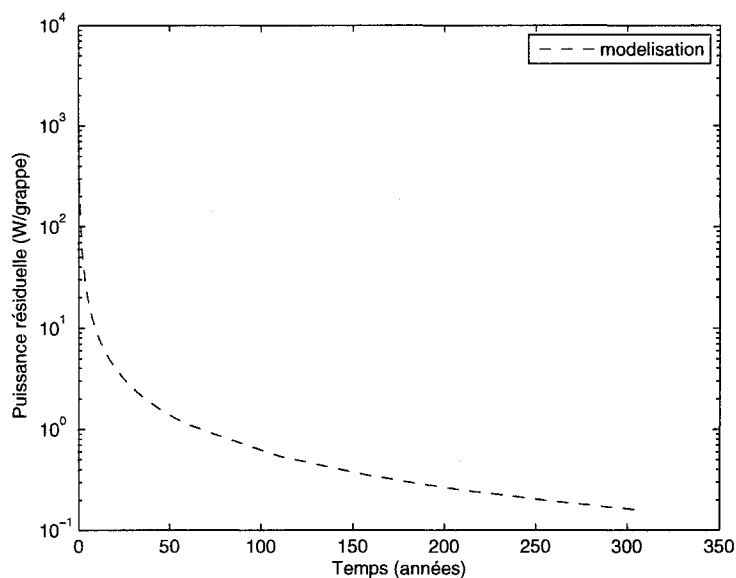
### 1.3.2.1 Approximation de puissance résiduelle

Nous pouvons également utiliser un modèle approximatif de calcul de la puissance résiduelle tel que celui présenté dans l'excellent ouvrage de Paul Reuss, le *precis de neutronique*. Bien qu'approximatif ce modèle, développé par Way et Wigner en 1948, permet d'obtenir facilement un ordre de grandeur de la puissance résiduelle et de son évolution dans le temps.[Reuss, 2003a]

$$P_r = 5,9 \cdot 10^{-3} P_0 [t^{-0,2} - t + T^{-0,2}] \quad (1.52)$$

Dans cette équation,  $t$  est la durée en jours suivant l'arrêt du réacteur nucléaire<sup>19</sup>,  $T$  est la durée en jour durant laquelle le réacteur a fonctionné à la puissance  $P_0$ . Le graphique

FIGURE 1.4 Puissance résiduelle selon le modèle de Way et Wigner (Présenté par Paul Reuss)



<sup>19</sup>Restriction d'utilisation de la formule : ne l'utiliser pour un temps  $t$  inférieur à 10 secondes



1.4 montre clairement l'évolution relativement monotone de la puissance résiduelle selon le modèle ici proposé.

Nous utiliserons cette approximation par la suite pour valider les ordres de grandeur de nos calculs de puissance résiduelle. Il faudra cependant garder à l'esprit les limites de ce modèle, qui est forcément conservateur<sup>20</sup> et qui ne pourra nous donner des éléments de comparaisons au delà 20 ou 30 ans suivant la sortie du cœur.

De plus il ne prend forcément pas en compte les spécificités du combustible CANDU, puisqu'il a été proposé à une époque où l'architecture et les conditions opératoires des réacteurs n'avaient rien à voir avec celles connues à l'heure actuelle.

Mais l'idéal serait de comparer les résultats que nous allons obtenir au fur et à mesure dans nos simulations avec un cas concret. Seulement l'énergie nucléaire est très récente au regard des temps que nous espérons simuler<sup>21</sup>. Nous ne pourrions donc comparer nos résultats, qu'en partie, avec la réalité.

L'étude complète sera réalisée au chapitre 5.

## 1.4 Conclusion

Nous avons présenté ici les différents concepts nous permettant de modéliser la puissance résiduelle. Nous y avons notamment remarqué la relative simplicité de ce calcul, mais la complexité d'obtention des données d'énergie de décroissance.

Ce dernier point sera d'ailleurs un élément de réflexion dans les chapitres suivants : il va falloir traiter les données de décroissance radioactive, comprendre celles qui peuvent être négligées ou modélisées d'une autre manière.

---

<sup>20</sup>Pour des raisons de sûreté, il surestime vraisemblablement la puissance résiduelle.

<sup>21</sup>Le nucléaire civil à environ 50 ans et nous comptons étudier notre combustible irradié jusqu'à des périodes de temps de l'ordre de 300 voir 100000 ans.

Mais avant cela, il convient de s'intéresser au traitement des données de concentrations, et à la méthode de calcul de la puissance résiduelle. Ce qui sera l'objet du chapitre suivant.

## CHAPITRE 2

### SCHÉMA DE CALCUL

Après une rapide présentation de ce qu'est un réacteur nucléaire, nous nous intéresserons ici aux manipulations de données que nous avons eu à effectuer pour évaluer la puissance résiduelle. Puis nous effectuerons un premier test de nos schémas de calcul afin de valider leurs bons fonctionnements, et présenterons les limites de ce modèle.

#### 2.1 Mise en situation

##### 2.1.1 Introduction aux réacteurs nucléaires

Le réacteur est la partie non conventionnelle d'une centrale électro-nucléaire. Même si de nombreuses applications de la chaleur libérée par la fission nucléaire contrôlée sont possibles<sup>1</sup>, la technologie actuelle se *contente* de vaporiser de l'eau afin d'entraîner une turbine elle-même reliée à un alternateur.

##### 2.1.1.1 La réaction de fission

La stabilité d'un noyau atomique est un équilibre entre les forces d'attractions nucléaires et celles de répulsions électromagnétiques. La force nucléaire ayant une portée extrêmement restreinte, elle a beaucoup de mal à s'opposer à la force électromagnétique lorsque les noyaux atteignent des tailles trop importantes.

Les atomes lourds, tels que ceux situés au delà de l'actinium sur la table de classification des éléments, ont-ils donc souvent la possibilité de se fissionner en deux atomes

---

<sup>1</sup>Déssalement d'eau de mer, production d'hydrogène...

plus légers pour réaliser une sorte *d'économie d'énergie*. En effet, l'équilibre des forces dont nous parlions précédemment, est plus facile à réaliser pour un nombre moyen de nucléons<sup>2</sup>.

Ainsi l'énergie de liaison utilisée pour maintenir la cohésion de l'atome lourd peut être en partie libérée lors de la fission puisque la somme des énergies de liaisons des produits de fissions est moindre. Entre l'atome de départ et ces deux isotopes fils (après leurs différentes désintégrations radioactives) nous avons une différence d'énergie de liaison d'environ 200 MeV, que nous récupérons par fission<sup>3</sup>. Un tel phénomène est appelé *fission spontanée*, elle est *à priori* impossible, mais il arrive, car la mécanique quantique est probabiliste, qu'elle se produise par effet tunnel si l'atome arrive à passer outre la barrière d'énergie de fission. De plus, lors de cette fission, 2, 3 neutrons en moyenne sont également éjectés. Ces neutrons ont, pour principale particularité, celle de ne pas être chargés et donc de ne pas interagir avec le nuage électronique des atomes qui les entourent, mais seulement avec leurs noyaux. Or, en cas de chocs avec un noyau lourd, ils apportent à la fois leur énergie de masse à l'atome, mais également leur énergie cinétique et leur énergie d'appariement. Certains noyaux n'ont pas besoin d'autant d'énergie pour fissionner et même un neutron de basse énergie cinétique peut provoquer leur fission. L'uranium 235 par exemple peut se passer de l'apport relatif à l'énergie cinétique du neutron pour fissionner, on le qualifie alors de fissile, car sa barrière de fission est très basse et sa configuration nucléaire permet de récupérer un maximum d'énergie lors de l'appariement du neutron. Nous parlerons alors de « *fission thermique induite* ».

S'il nous faut 1 neutron pour induire une fission et que celle ci en relache un peu plus de 2, on peut alors facilement imaginer que ces 2 neutrons vont à leur tour induire 2 fissions, qui vont elles mêmes éjecter 4 neutrons qui vont induire autant de fissions...

---

<sup>2</sup>Les atomes les plus stables se situent aux alentours d'un nombre de masse de 50, ce sont ceux qui entourent notamment le fer 54

<sup>3</sup>Soit environ  $3,2 \cdot 10^{-11}$  joules. Cette valeur peut paraître faible, mais elle est à comparer aux 4,5 keV (environ  $7,6 \cdot 10^{-16}$  joules) produits par la rupture d'une liaison carbone par exemple, cela représente une différence de 45000 en ordre de grandeur.

On appelle ce phénomène, la réaction en chaîne<sup>4</sup>. Vous noterez son caractère exponentiel, puisqu'après 10 générations de fission,  $2^{10}$  (Soit 1024) neutrons sont émis.

### 2.1.1.2 Architecture

Un réacteur nucléaire est le siège d'une réaction en chaîne non exponentielle. En effet, nous avons précisé que les neutrons interagissaient avec les noyaux qu'ils rencontraient. Or ces neutrons n'entrechoquent pas forcément des noyaux fissiles sur leurs passages. Ils sont donc en partie absorbés dans les structures, ou la matière, présentent autour du siège de la fission. En ayant un équilibre exact entre neutrons absorbés induisant une fission et neutrons réémis aboutissant également à une fission à la génération suivante (ce qui suppose que les 1,3 neutrons, restant en moyenne, interagissent avec un noyau non fissile), nous pouvons contrôler la réaction en chaîne et la maintenir à un niveau de fission donné. De fait, une centrale nucléaire se décrit en quelques caractéristiques techniques élémentaires, révélatrices de l'environnement où évoluent les neutrons :

- *L'enrichissement du combustible choisi.*

Les concentrations isotopiques naturelles de l'uranium sont directement liées à la demie-vie de ses différents isotopes : en proportion équivalente lors de la formation de la terre, seuls restent aujourd'hui ceux ayant les demie-vies longues, à savoir les isotopes d'uranium 234, d'uranium 235 et d'uranium 238. Les autres isotopes ont disparu par décroissance radioactive, mais cette décroissance radioactive est également responsable des concentrations isotopiques relatives actuelles où seulement 0,711% de la masse d'uranium naturel est dû au seul isotope fissile encore disponible : l'uranium 235.

Cette concentration en matière fissile est, la plupart du temps, insuffisante pour maintenir la réaction en chaîne dans un réacteur nucléaire<sup>5</sup>, aussi doit on procéder

---

<sup>4</sup>La réaction en chaîne n'est pas un phénomène particulier à la physique nucléaire, le feu est, en soit, une réaction en chaîne ou la chaleur joue le même rôle que le neutron : elle effectue la pyrolyse des matériaux puis provoque leur inflammation spontanée des émanations gazeuses ; c'est à dire la rupture exothermique des liaisons chimiques des molécules.

<sup>5</sup>Si la structure est trop absorbante, notre neutron n'a pas assez de chances de rencontrer un atome

à un enrichissement en isotopes d'uranium 235, c'est à dire une augmentation de sa proportion en masse. Les enrichissements généralement retenus pour les applications civiles actuelles sont de l'ordre de 2 à 4 pourcents.

- *Le choix du modérateur.*

La probabilité de rencontre entre les deux acteurs de la réaction en chaîne, neutrons et noyaux fissiles, est appelé section efficace. Or cette section efficace dépend directement de l'énergie cinétique des neutrons : elle est bien plus élevée pour les neutrons de basse énergie. Lorsque l'on sait que l'énergie cinétique d'une particule est directement liée à sa vitesse par la relation  $E_c = \frac{1}{2}mv^2$ , on comprend très facilement qu'un neutron de faible énergie, donc de faible vitesse, a de plus grandes chances d'entrer en collision avec un noyau<sup>6</sup>.

Il faut donc ralentir les neutrons, ce qui est le rôle du modérateur.

Le modérateur est composé d'atomes de faibles nombres de masse mais de fortes sections efficaces de collision. En fait la théorie du ralentissement neutronique peut être vue comme un jeu de boule de billard. Le neutron, de nombre de masse 1, entre en collision avec des atomes de modérateur. Ces atomes, s'ils ont la même masse que lui, vont emporter en moyenne la moitié de son énergie cinétique après le choc, comme deux boules de billard entrant en collision (sans effet). Ceci est simplement dû à la nécessité de conservation de la quantité de mouvement avant et après le choc. Un atome de nombre de masse A, n'emportera avec lui, en moyenne, qu'une fraction équivalent à  $\frac{1}{A+1}$  de l'énergie du neutron. L'atome le plus léger, l'hydrogène, au sein de la molécule d'eau ( $H_2O$ ), est donc idéal. Malheureusement, il a la fâcheuse tentance à retenir le neutron rencontré pour former un atome de deutérium, ce qui rend le neutron en question indisponible pour la réaction en chaîne.

La faible concentration en isotopes d'uranium 235 de l'uranium naturel nécessite

---

fissile avant de se faire absorber, en pur perte, simplement parce que les atomes fissiles sont trop peu nombreux

<sup>6</sup>En effet, le neutron ralentit à plus de chance de se faire haper par le noyau tel un satellite artificiel en fin de vie que l'on freine pour le forcer à rentrer en basse atmosphère et à se consumer par friction sur l'air.

une gestion très économique des neutrons dans le cœur. Pour y parvenir, il faut donc utiliser un modérateur peu absorbant en neutrons tel que l'eau lourde ou le carbone pur (graphite). Dans l'eau lourde, l'atome de deutérium possède déjà un neutron surnuméraire, et la chance d'en capturer un nouveau pour former du tritium est très faible. Cependant, la masse plus élevée de deutérium nécessite un plus grand nombre de collision pour atteindre l'équilibre thermique<sup>7</sup> tout comme pour le carbone. En effet, ce dernier est peu absorbant, mais étant donné qu'il est presque 12 fois plus lourd que l'hydrogène, le libre parcours moyen des neutrons<sup>8</sup> est important, et les réacteurs se basant sur ce choix technologiques sont en général de grandes dimensions.

- *Le choix du caloporteur.*

L'énergie thermique générée par la fission doit être extraite du cœur du réacteur pour être transformée en électricité. Pour ce faire, on utilise souvent un liquide<sup>9</sup> dans un circuit fermé (eau lourde, eau légère, sodium fondu...) que l'on force à travers des conduites, au sein même des réacteurs nucléaires. La plupart des réacteurs fonctionne sous pression, ceci permet d'éviter l'ébullition du fluide et donc d'atteindre des températures de cycle thermique plus élevées. Afin de minimiser l'impact de ce fluide sur la réaction en chaîne, on le choisit en général pour sa faible absorption neutronique.

---

<sup>7</sup>Les notions d'énergie, de vitesse et de température sont intimement liées. Lorsque la vitesse d'un neutron diminue son énergie cinétique diminue aussi. Lorsqu'elle est du même ordre de grandeur que celle des molécules du milieu, on parle d'équilibre thermique. En effet, l'agitation moléculaire dépend directement de l'énergie des atomes, et se traduit en chaleur, température.

<sup>8</sup>C'est à dire, approximativement, la distance nécessaire pour ralentir le neutron.

<sup>9</sup>Les réacteurs de la première filière française (UNGG) utilisait le gaz ( $CO_2$ ) comme caloporteur. Mais des contraintes de rendement (il ne permettaient alors pas d'atteindre un burnup élevé) et de standardisation ont poussé à l'usage de l'eau dans les réacteurs de la génération actuelle (REP). Ce choix du gaz comme caloporteur tend à revenir notamment en configuration de réacteur à très haute température et convection naturelle (HTR). Ceci est essentiellement dû à leur côté sécuritaire : la convection naturelle n'a pas besoin d'éléments mécaniques pour refroidir le cœur, ce qui simplifie notablement les procédures en cas d'accidents.

### 2.1.1.3 Filière

Décrivons succinctement ici l'architecture de 2 types de réacteurs nucléaires parmi les plus classiques, ceux de type CANDU, et ceux de type PWR (ou REP).

- *Les Réacteurs à Eau Pressurisée .*

Ces réacteurs font double usage de l'eau légère : à la fois comme modérateur et comme caloporteur. Ceci conditionne l'enrichissement de l'uranium aux environs de 3, 5%, mais permet de loger l'ensemble du coeur dans une cuve unique verticale que l'on pressurise et qu'il est nécessaire d'ouvrir à chaque rechargement. Ce type de réacteur, développé au départ aux États-Unis, est actuellement le plus répandu dans le monde. Simple à mettre en oeuvre, ce réacteur lie le producteur d'électricité à un service d'enrichissement d'uranium, ce qui permet un contrôle de l'usage qui est fait du combustible avant et après l'utilisation en cœur.

- *Le réacteur nucléaire canadien, habituellement appelé CANDU.*

Ce réacteur utilise l'eau lourde comme modérateur et comme caloporteur<sup>10</sup>. La séparation physique entre les deux fluides permet notamment un rechargement en marche du combustible et une gestion toute particulière du combustible. L'usage d'eau lourde est très économique en neutron puisqu'elle les absorbe beaucoup moins, aussi peuvent-ils être absorbés par des atomes fertiles et permettre un usage plus important des ressources en uranium, voire en thorium. Cependant l'eau lourde est également un moins bon modérateur : les neutrons ont besoin de plus de collisions pour ralentir et, de fait, le réacteur est de dimensions plus imposantes. Il ne peut être contenu dans une cuve pressurisée, seuls les tubes de forces, dans lesquels circule le caloporteur, le sont.

---

<sup>10</sup>L'évolution du réacteur CANadian Deuterium-Uranium, l'ACR-700 (Advance CANDU Reactor) utilise de l'eau légère comme caloporteur, et de l'uranium enrichie à environ 2,7% comme combustible.



## 2.1.2 Domaine, méthode et outils d'étude

### 2.1.2.1 Zone d'étude

Notre étude va essentiellement s'intéresser aux réacteurs de type CANDU. Outre leurs spécificités présentées ci dessus, ces réacteurs ont la particularité d'utiliser un combustible conditionné en *grappe*.

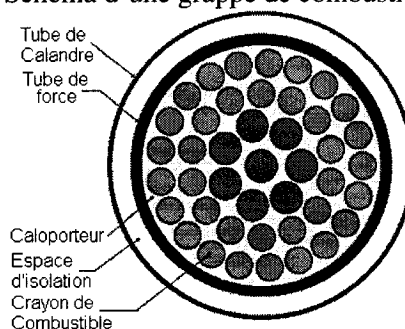
TABLEAU 2.1 Géométrie des grappes de combustible CANFLEX.

CANDU-6	
Rayon interne du crayon central (mm) :	6,31
Rayon interne d'un crayon du premier anneau (mm) :	6,31
Rayon interne d'un crayon du second anneau (mm) :	5,36
Rayon interne d'un crayon du troisième anneau (mm) :	5,36
Densité du combustible ( $\frac{g}{cm^3}$ )	10,6
Volume du combustible ( <i>litres</i> )	1,88
Masse du combustible ( <i>kg</i> )	17,75
ACR-700	
Rayon interne du crayon central (mm) :	8,00
Rayon interne d'un crayon du premier anneau (mm) :	5,36
Rayon interne d'un crayon du second anneau (mm) :	5,36
Rayon interne d'un crayon du troisième anneau (mm) :	5,36
Densité du combustible ( $\frac{g}{cm^3}$ )	9,78
Volume du combustible ( <i>litres</i> )	1,97
Masse du combustible ( <i>kg</i> )	19,75

Ainsi que récapitulé au tableau 2.1, les grappes que nous avons choisi d'étudier sont de la dernière génération. Ce sont de petites structures constituées de 43 tubes métalliques d'environ 6 millimètres de rayon appelés *crayon*. Ces crayons sont disposés en fuseau d'une cinquantaine de centimètres de long, leurs centres étant installés régulièrement sur des cercles concentriques plus ou moins éloignés du centre géométrique de la grappe. Un seul crayon occupe le centre de la grappe, 7 crayons sont installés sur le premier cercle concentrique (celui au plus petit diamètre) entourant le crayon central, 14 crayons sont

installés sur le second cercle, et 21 crayons sont installés à la périphérie de la grappe, sur le troisième et dernier cercle.

FIGURE 2.1 Schéma d'une grappe de combustible CANFLEX.



La figure 2.1 présente la géométrie générale d'une de ces grappes CANFLEX intégrée dans un tube de force de réacteur CANDU-6. Nous y retrouvons les différents crayons présentés plus haut, mais aussi la géométrie particulière des CANDU : les tubes de force.

Le volume du combustible ainsi agencé est de presque  $2000\text{cm}^3$ . Comme il s'agit d'une céramique d'oxyde d'uranium naturel, sa densité est relativement élevée, chaque grappe contient ainsi presque 20 kilogramme de ce combustible.

Nous avons également dû simuler le comportement des grappes traditionnelles du réacteur CANDU-6 ayant seulement 37 crayons de tailles identiques<sup>11</sup> pour une masse de combustible à peu près identique.

Lors de son passage en réacteur, la grappe subit un bombardement neutronique intense<sup>12</sup>, il s'en suit des fissions, telles que décrites précédemment, et des modifications de la composition isotopique de la céramique.

En effet, tandis que les noyaux d'uranium sont brisés par fission, de nouveaux noyaux,

<sup>11</sup>Répartition sur les anneaux concentriques :  $1 + 6 + 12 + 18 = 37$

<sup>12</sup>Le flux neutronique dans un réacteur en marche est de l'ordre de  $10^{14} \frac{\text{neutrons}}{\text{cm}^3 \cdot \text{s}}$  [Marleau, 2004b]

appelés *produits de fission*, apparaissent<sup>13</sup>. Les produits de fissions sont choisis parmi plus d'une centaine isotopes potentiels, selon des ratios de production connus. D'autre part, les neutrons non consommés par fission sont absorbés, ou par les produits de fission, ou par l'uranium<sup>14</sup>, ou par la structure du réacteur et les impuretés<sup>15</sup>.

Tous ces isotopes radioactifs, vont participer au relachement global d'énergie dans la grappe de combustible même après la sortie du cœur.

Or, cette énergie n'est pas dégagée instantanément, car la décroissance radioactive d'un isotope peut être non-négligeable parfois quelques millions d'années. La grappe reste donc *chaude*, au sens propre du terme, et active (émettrice de rayonnements de toutes sortes) pendant longtemps.

L'activité est loin d'être négligeable puisqu'elle génère suffisamment de chaleur pour abîmer les grappes de combustible si celles-ci ne sont pas réfrigérées. Ainsi entrepose-t-on les grappes de combustible usées dans des piscines durant les 6 premières années après leur sortie du cœur. L'eau permet un échange de chaleur efficace et évacue l'énergie résiduelle par convection naturelle.

Avec le temps et l'épuisement progressif des noyaux se désintégrant, la puissance résiduelle diminue, mais dans quelle mesure et à quel rythme ?

Pour répondre à cette question, nous avons toujours eu recours à trois étapes de calcul, que nous présentons ici.

---

<sup>13</sup>Ces noyaux ont des nombres de masse compris entre 70 et 160.

<sup>14</sup>Donnant ainsi des noyaux lourds tel que les américium curium et plutonium .

<sup>15</sup>Activant ainsi les certains isotopes légers tel que le deutérium , le carbone , le fer , le cobalt ... en de nombreux de leur isotopes radioactifs.

### 2.1.2.2 Le suivi des grappes en cœur

Nous connaissons la constitution précise de la grappe en entrée du cœur, avant toutes réactions nucléaires. Le logiciel DRAGON permet d'estimer le flux neutronique à niveau du combustible nucléaire dans un réacteur en s'appuyant notamment sur la méthode des probabilités de collisions.[Hebert et al., 1994b, Marleau, 2004c]

Une équation représente l'évolution des neutrons : l'équation de transport. C'est elle qui régit la vie des neutrons à travers le réacteur. Depuis leur production jusqu'à leur destruction, tout au long de leur parcours : entre collision avec d'autres atomes et variation d'énergie cinétique associée. Cette équation est à la base de la neutronique.

La méthode de probabilité de collision est, en fait, une méthode numérique qui permet d'en résoudre la forme intégrale.

Cette méthode se base sur l'observation que le flux en un point  $A$  donné est proportionnel à la source de neutron en  $B$ , multiplié par un facteur d'atténuation exponentielle proportionnelle à la distance optique  $\tau$  que le neutron aura parcouru pour se rendre de  $B$  à  $A$ . Elle s'appuie sur une discrétisation de l'espace en trois dimensions et des surfaces qui bornent chacune des régions de cet espace en deux dimensions. Ainsi le flux est-il décomposable en deux termes :

- Celui représentant la probabilité qu'un neutron entrant sur une surface ressorte.
- Celui représentant la probabilité qu'un neutron créé dans une région atteigne une surface

DRAGON est programmé de façon modulaire, chacun de ses éléments permettant d'effectuer une tâche précise pour aboutir à la résolution globale de l'équation de transport.

Parmi tous ceux-ci, le module EVO calcule les variations de concentrations des différents isotopes suivis, dont les données nucléaires<sup>16</sup> sont disponibles dans la bibliothèque

---

<sup>16</sup>Tels que les ratios de production par fissions.

utilisée. Pour ce faire, le logiciel part des concentrations initiales de chacun des nucléides de la bibliothèque (ceux non présents dans la grappe de départ sont assignés à une concentration nulle) et utilise les valeurs de flux données par les équations de transport neutronique dans les équations de champs des noyaux présentées au chapitre 1.2.2.

Ce travail est nécessaire car l'équilibre neutronique du cœur devant être en tout temps assuré, il nous faut connaître :

- La quantité de matière fissile disponible.
- L'inventaire des nouveaux produits de fission.

La connaissance de la matière fissile est nécessaire pour d'évaluer la réactivité<sup>17</sup> du cœur et de sa criticité car elle est la sources des neutrons. Mais elle caractérise aussi le combustible, qui s'épuise avec le temps puisqu'il n'y a qu'un surgénération partielle dans un CANDU. Les produits de fissions, quant à eux, sont autant de nouveaux obstacles que les neutrons peuvent heurter. Cette possibilité est d'autant plus forte que leur section efficace est importante<sup>18</sup>.

Cette première étape est nécessaire à toute étude de la composition isotopique d'une grappe. Seule une simulation complète de notre coeur de réacteur peut nous fournir des données exploitables pour ce travail. Les conditions exactes d'études sont détaillées au chapitre 2.3.1.

---

<sup>17</sup>La réactivité dans un réacteur nucléaire est un rapport de taux de réaction (elle est donc sans unité) entre la différence production-destruction de neutrons, et la destruction seule. La valeur de réactivité est généralement comprise dans l'intervalle :  $0 < \rho(t) < 1,0$  Les valeurs de réactivité sont extrêmement faibles et tournent en général autour de 0. On parle alors de réacteur criticité, c'est à dire d'un réacteur ayant une réaction en chaîne stable, qui ne s'embale ni ne s'étouffe pas. Une très faible variation de réactivité a des effets importants sur la réaction en chaîne. Ainsi pour faciliter son usage, on utilise des multiples de cette réactivité comme le milli-k (mk) qui correspond à la réactivité multipliée par 1000, ou le par-cent-mille (pcm) qui multiplie la réactivité par 100000. De fait, on obtient des chiffres significatifs faciles à manipuler.

<sup>18</sup>Le xénon 135 par exemple, introduit une réactivité<sup>17</sup> négative de 28mk, à titre de comparaison, le système d'arrêt d'urgence 1 (SAU1) d'un réacteur CANDU-6 introduit une réactivité négative de 48 à 60 mk via 28 barres absorbantes.[Rozon, 1992a, Rozon, 1992b]

### 2.1.2.3 Le suivi des grappes hors cœur

Mais au delà du suivi neutronique du cœur et de son équilibre, il est également possible, par exemple, d'évaluer le moment où le maintien de la réaction en chaîne ne sera plus possible sans remplacement du combustible usé.

Une fois ce combustible sorti du cœur, les valeurs de concentrations isotopiques retournées par DRAGON peuvent constituer un point de départ à l'analyse de l'évolution du combustible sans flux neutronique. En effet, la décroissance radioactive n'a, contrairement à la fission, nullement besoin du maintien de conditions artificielles drastiques telles que l'équilibre neutronique d'un milieu. Elle se produit « *naturellement* ». Le temps passant, les concentrations isotopiques changent, des isotopes disparaissent, d'autres apparaissent et de l'énergie est dégagée. Encore une fois, DRAGON est tout à fait capable d'évaluer ces modifications. Il suffit de considérer que toutes les réactions se déroulent de la même manière que lors du calcul précédent, mais sans aucun flux neutronique.

Ainsi, seule l'évolution du combustible sera considérée. Or, cette évolution est déterminée par des équations explicites telles que les équations de BATEMAN présentées au chapitre 1, qui sont traitées dans DRAGON par une méthode de Kaps-Rentrop. Cette méthode a montré sa fiabilité et sa précision. En partant de concentrations en sortie du cœur correctement évaluées l'utilisation de DRAGON pour effectuer la seconde étape de notre analyse, c'est à dire un calcul d'évolution à flux neutronique nul permet de connaître précisément l'évolution dans le temps, après la sortie du cœur, des concentrations isotopiques.

### 2.1.2.4 Le calcul de la puissance résiduelle

Si dans les deux étapes précédente, nous avons évalué l'évolution de la population nucléaire du combustible au sein du réacteur, puis après sa sortie, il nous faut maintenant

effectuer un troisième calcul pour atteindre notre but : calculer la puissance résiduelle (équation 1.50).

Pour cela, nous avons dû développer un module de calcul pour le logiciel DRAGON, qui permet d'évaluer la puissance résiduelle<sup>19,20</sup> développée par le combustible nucléaire en se basant sur ces évaluations de composition isotopique du combustible.

Cette étape de calcul était un point d'appui essentiel à notre recherche. De plus il ne s'agissait pas, ici, d'utiliser des outils existant, mais d'en concevoir de nouveaux. Ce travail est illustré, dans ses grandes lignes, à la section suivante.

## 2.2 Les modules EQV et EDC

Le premier problème à résoudre dans notre démarche de programmation, fut l'introduction de données d'énergie de décroissance dans DRAGON. En effet, les énergies développées par chacun des atomes radioactifs lors de leurs décroissances sont des données spécifiques. Le modèle de différence de masses présenté en section 1.3.1 n'est pas assez précis pour permettre l'évaluation des énergies de décroissance à partir des seules données contenues dans la bibliothèque utilisée par DRAGON<sup>21</sup>.

Les données exactes d'énergie sont pourtant disponibles dans la bibliothèque de départ ENDFB-VI, mais la version condensée qu'utilise DRAGON (WIMS) ne les contient pas. Il nous a donc fallu programmer un module permettant d'extraire les données voulues depuis un fichier spécifique, que nous avons préalablement constitué en rassemblant les données issue directement des tables ENDFB-VI.[Browne et Firestone, 1986]

---

<sup>19</sup>Nous calculons en effet ici une *puissance* et non une *chaleur résiduelle*. La notion de "chaleur" faisant intervenir la thermodynamique. Celle d'énergie, est couplée avec celle de décroissance : elle concerne les propriétés intrinsèques des isotopes

<sup>20</sup>Par abus de langage, dans le présent rapport, nous parlerons souvent de puissance au lieu de densité de puissance, sachant que les deux idées sont liées simplement par celle d'un facteur de volume donnée et que l'une comme l'autre ne sont que deux facettes illustrant différemment une même réalité.

<sup>21</sup>À savoir : les masses des différents atomes

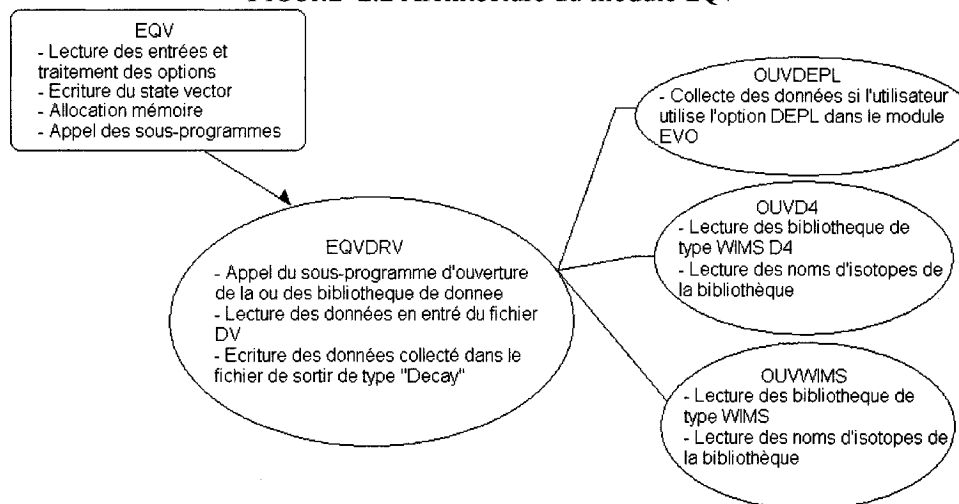
Pour réaliser le calcul de puissance résiduelle en lui même, nous avons programmé un autre module spécifique qui travaille à partir des données issues des calculs d'évolution et de celles traitées par le premier module. Ainsi nous avons :

- *Evaluation of Q-Values* (noté EQV dans la suite du rapport) pour l'extraction de données.
- *Energy Decay Calculation* (noté EDC dans la suite du rapport) pour le calcul proprement dit.

### 2.2.1 Détails sur EQV

Le module EQV crée un fichier de type DECAF<sup>22</sup> où il enregistre les données nécessaires à la suite du calcul, pourvu que ces données aient été correctement écrites dans le fichier ASCII d'entrée (voir annexe III.1.2 pour la description du fichier ASCII en question).

FIGURE 2.2 Architecture du module EQV



<sup>22</sup>voir annexe III.1.1 pour la description de ce type de liste chaînée



La figure 2.2 présente l'architecture de ce module, elle est extrêmement simple : le module EQV traitant les entrées et options, alors que le sous-module EQVDRV lie les données et appelle les sous-modules d'ouverture des bibliothèques en fonction de ce qui fut demandé par l'utilisateur. Par la suite, les capacités du logiciel DRAGON évoluant, ces notions d'énergies de décroissances seront certainement traitées avec le reste des données de la bibliothèque. Le module EQV deviendra donc caduque, voilà pourquoi il a été programmé comme un module indépendant.

### 2.2.2 Détails sur EDC

Le modules EDC traite les données, il fait coïncider les valeurs de lambdas<sup>23</sup> des isotopes avec leurs concentrations respectives et calcule la densité de puissance résiduelle totale. Il possède différentes options et autres fonctionnalités dont la description est disponible en annexe III.2.2.

Mais il faut savoir que ce module a la principale particularité, si on le lui demande, de pouvoir évaluer aussi bien la puissance résiduelle de façon globale, que de façon détaillée. À savoir : il est possible de connaître la contribution de chaque isotopes à la puissance résiduelle à un instant donné, et même de détailler la nature de cette contribution (Suivant le type de rayonnement :  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$ ...). Ces fonctionnalités nous ont permis de mener les études présentés au chapitre 5, mais avant d'aborder ses points, il convient ici de présenter l'architecture du module et de ses sous-modules.

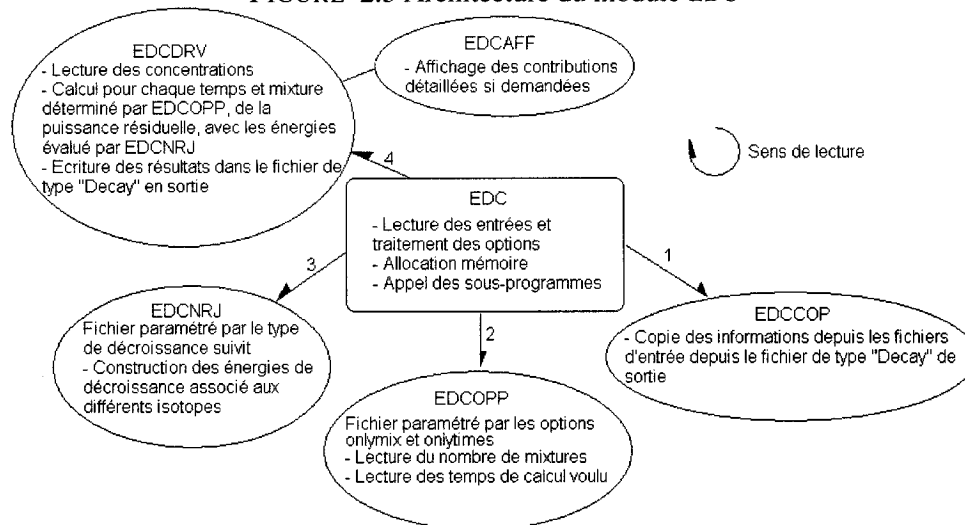
La figure 2.3 présente l'architecture de ce module, elle est bien plus complexe que celle du module EDC : le module EDC proprement dit traite lui aussi les entrées et options. Mais il délègue toutes les fonctions de traitement des données à différents autres sous-modules appelés successivement.

Ainsi EDCCOP s'occupe de collecter des données, puis EDCOPP gère l'organisation

---

<sup>23</sup>La fréquence de décroissance radioactive,  $\lambda$ , découle directement de la demie-vie isotopique et est essentielle au calcul de puissance résiduelle tel que présenté dans la chapitre 1.

FIGURE 2.3 Architecture du module EDC



de ces données suivant les options choisies par l'utilisateur. Le sous-module EDCNRJ sélectionne les énergies qui vont servir aux calculs, suivant les options choisies et traité par EDCOPP. Enfin, le sous modules EDCDRV effectue le calcul en utilisant les données traité par les précédent sous-modules activé et affiche, les résultats via le sous-module EDCAFF.

Les résultats du calcul sont enregistrés dans la liste chaînée de type DECA<sup>22</sup>. Leurs détails ne sont présentés que si l'utilisateur a demandé un niveau d'édition suffisant.

### 2.3 Validation des modules

Nous avons, bien évidemment, validé nos modules de calcul. Dans un premier temps nous voulions vérifier qu'aucune erreur de programmation, de traitement des données, ou d'arrondi ne s'était glissée dans nos modules de calculs. Par la suite, nous nous intéresserons aux autres erreurs de calcul : celle d'ordre plutôt philosophiques, celle touchant la méthode et non les outils. Mais, au vu de leurs complexités, nous avons choisi

de les détailler les chapitres 3 et 4.

### 2.3.1 Conditions d'étude

Nous avons choisi d'utiliser des conditions opératoires nominales pour nos simulations, essentiellement pour obtenir des résultats comparables à des données connues.

Nous présentons ici ces hypothèses, car nous en avons eu besoin dès les calculs de validations des modules, cependant il faut savoir qu'elles resteront valables, sauf mention contraire, pour la suite de l'étude ceci afin d'obtenir des résultats cohérents et comparables tout au long de notre travail de recherche. Elles sont présentées au tableau 2.2.

Nous avons effectué les calculs de cellule en coeur et ceux d'évolution isotopique hors coeur pour un niveau de puissance nominale<sup>24</sup>. Sauf lorsqu'il a fallu s'intéresser à l'influence de la puissance sur l'inventaire isotopique tel que présenté dans le chapitre 3<sup>25</sup>.

Les bibliothèques utilisées pour ce calcul sont de deux types

- WIMS (E6MLIB, ENDF-B VI à 89 groupes),
- WIMSD4 (IAEA69, ENDF-B VI à 69 groupes).

En effet, il s'agit des deux types de bibliothèques actuellement utilisables par les modules EQV et EDC et pour lesquelles nous voulions valider nos modules. Le logiciel DRAGON les utilise pour générer la liste des isotopes qu'il va réellement suivre et dont les concentrations seront disponibles à l'issue de son exécution. Nous avons présenté au tableau 2.3 cette liste d'isotope.

---

<sup>24</sup>Puissance nominale par canal : 615kW pour un CANDU-6 et 780kW pour un ACR-700, voir le tableau 3.1 pour plus de détail.

<sup>25</sup>Les conditions choisies seront alors exposées en lieu et place de leurs utilisations.

TABLEAU 2.2 Conditions thermodynamiques de calculs.

Paramètres			
		CANDU-6	ACR-700
Caloporteur	Température d'entrée(K)	560,66	570,16
	densité de sortie ( $g/cm^3$ )	0,44437	calculée
	pureté (wgt%)	99,30%	99,78%*
Modérateur	Température (K)	345,66	346,16
	pureté	99,92%	99,92%
Combustible	Température centrale moyenne de crayon (K)	941,26	1014,63
	Densité $\frac{g}{cm^3}$	10,4375	10,0000**
*Il s'agit dans ce cas d'eau légère ( $H_2O$ ). (Les 0,22% correspondent aux molécules de $D_2O$ naturellement présentes dans l'eau) **Sauf pour le crayon central : $9,75 \frac{g}{cm^3}$			

TABLEAU 2.3 Isotopes pour lequel le calcul d'évolution de concentration a été effectué sous DRAGON(présents dans la bibliothèque WIMS).

Noms des isotopes évalués par DRAGON							
<sup>109</sup> Ag	<sup>135</sup> Cs	<sup>157</sup> Gd	<sup>144</sup> Nd	<sup>105</sup> Pd	<sup>141</sup> Pr	<sup>101</sup> Ru	<sup>233</sup> U
<sup>241</sup> Am	<sup>160</sup> Dy	<sup>129</sup> I	<sup>145</sup> Nd	<sup>107</sup> Pd	<sup>143</sup> Pr	<sup>102</sup> Ru	<sup>234</sup> U
<sup>242</sup> Am	<sup>161</sup> Dy	<sup>135</sup> I	<sup>146</sup> Nd	<sup>108</sup> Pd	<sup>236</sup> Pu	<sup>103</sup> Ru	<sup>235</sup> U
<sup>243</sup> Am	<sup>162</sup> Dy	<sup>115</sup> In	<sup>147</sup> Nd	PFP	<sup>238</sup> Pu	<sup>147</sup> Sm	<sup>236</sup> U
<sup>113</sup> Cd	<sup>163</sup> Dy	<sup>83</sup> Kr	<sup>148</sup> Nd	PFP2	<sup>239</sup> Pu	<sup>149</sup> Sm	<sup>238</sup> U
<sup>141</sup> Ce	<sup>164</sup> Dy	<sup>139</sup> La	<sup>237</sup> Np	<sup>147</sup> Pm	<sup>240</sup> Pu	<sup>150</sup> Sm	<sup>238</sup> U NF
<sup>142</sup> Ce	<sup>153</sup> Eu	<sup>100</sup> Mo	<sup>238</sup> Np	<sup>148</sup> Pm	<sup>241</sup> Pu	<sup>151</sup> Sm	<sup>131</sup> Xe
<sup>144</sup> Ce	<sup>154</sup> Eu	<sup>95</sup> Mo	<sup>239</sup> Np	<sup>148</sup> Pm M	<sup>242</sup> Pu	<sup>152</sup> Sm	<sup>133</sup> Xe
<sup>133</sup> Cs	<sup>155</sup> Eu	<sup>97</sup> Mo	<sup>16</sup> O	<sup>149</sup> Pm	<sup>103</sup> Rh	<sup>99</sup> Tc	<sup>135</sup> Xe
<sup>134</sup> Cs	<sup>156</sup> Eu	<sup>143</sup> Nd	<sup>233</sup> Pa	<sup>151</sup> Pm	<sup>105</sup> Rh	<sup>232</sup> Th	<sup>93</sup> Zr

### 2.3.2 Résultats

Nous sommes partis de concentrations obtenues depuis un calcul effectué dans les conditions présentées plus haut, avec la bibliothèque de type WIMS, mais sans exécuter les modules EQV et EDC. Puis nous avons évalué la puissance résiduelle selon l'équation 1.50 mais à l'aide d'un tableur<sup>26</sup>.

On ne compare ainsi que les effets des modules testés sur les résultats. En fait nous suivons déjà la procédure de calcul présentée à la section 2.1.2.1, et qui sera suivi tout au long de notre étude.

#### 2.3.2.1 Données spécifiques utilisées

Vous trouverez dans le tableau 2.4 la liste des isotopes et des données associées (demie-vie et énergie de décroissance), utilisées pour ces calculs.

Nous n'avons utilisé ici que les données de Q-value et non le détail complet des différentes décroissances dont nous avons discuté à la toute fin du chapitre 1. Le but n'étant, encore une fois, pas d'obtenir des valeurs de densité de puissance exploitables, mais des données de comparaison.

TABLEAU 2.4: Noms et caractéristiques des isotopes utilisés.

Noms et caractéristiques des isotopes utilisé par EDC.					
Atome	Énergie de décroissance (MeV)	Demie-vie (secondes)	Atome	Énergie de décroissance (MeV)	Demie-vie (secondes)
$^{241}_{95}Am$	5,62890	1,36390E+10	$^{149}_{61}Pm$	0,37660	1,91089E+05

<sup>26</sup>Microsoft EXCEL

Suite de la page précédente					
Atome	Énergie de décroissance (MeV)	Demie-vie (secondes)	Atome	Énergie de décroissance (MeV)	Demie-vie (secondes)
$^{243}_{95}Am$	5,43110	2,32889E+11	$^{238}_{94}Pu$	5,59070	2,76927E+09
$^{141}_{58}Ce$	0,24690	2,80889E+06	$^{239}_{94}Pu$	5,24270	7,60839E+11
$^{144}_{58}Ce$	1,34900	2,45639E+07	$^{240}_{94}Pu$	5,25350	2,06700E+11
$^{134}_{55}Cs$	1,72000	6,50717E+07	$^{241}_{94}Pu$	0,00540	4,63892E+08
$^{154}_{63}Eu$	1,53200	2,71399E+08	$^{242}_{94}Pu$	4,98130	1,18751E+13
$^{155}_{63}Eu$	0,13110	1,56529E+08	$^{105}_{45}Rh$	0,23020	1,27299E+05
$^{135}_{53}I$	2,03310	2,37959E+04	$^{234}_{92}U$	4,85580	7,71879E+12
$^{237}_{93}Np$	4,81270	6,75582E+13	$^{235}_{92}U$	4,67430	2,22099E+16
$^{239}_{93}Np$	0,42660	2,03388E+05	$^{236}_{92}U$	4,56800	7,38908E+14
$^{147}_{61}Pm$	0,06190	8,27877E+07	$^{238}_{92}U$	5,17050	1,41010E+17
$^{148}_{61}Pm$	1,30300	4,63968E+05	$^{135}_{54}Xe$	0,56680	3,27239E+04
$^{148}_{61}Pm$ M	2,15570	7,28221E+07			

### 2.3.2.2 Comparaison des modèles de calculs

Le calcul de différences ayant été effectué pour le type de bibliothèque WIMS<sup>27</sup> seulement. Nous avons répertorié dans le tableau 2.5 les différentes puissances résiduelles évaluées à des temps s'échelonnant de la sortie du cœur à 300 ans.

<sup>27</sup>WIMS, WIMS-EACL et WIMD4

TABLEAU 2.5: Évolutions de puissances résiduelles selon les méthodes de calcul utilisées, sur la première année.

temps (jours)	temps (années)	Énergie en $\frac{W}{grappe}$			Différence en % tableur vs DRAGON (WIMS)
		WIMS sur DRAGON	WIMS sur tableur	Liste étendue sur tableur	
0	0,0000	1582,0625	1582,0598	1582,9664	0,0002%
28	0,0767	140,4939	140,4944	140,5238	-0,0004%
56	0,1534	107,4851	107,4856	107,5029	-0,0005%
84	0,2301	86,6772	86,6769	86,6869	0,0003%
112	0,3068	72,8789	72,8788	72,8844	0,0002%
140	0,3836	63,3208	63,3206	63,3236	0,0002%
168	0,4603	56,3658	56,3657	56,3670	0,0003%
196	0,5370	51,0405	51,0403	51,0407	0,0004%
224	0,6137	46,7623	46,7621	46,7620	0,0005%
252	0,6904	43,1804	43,1804	43,1799	0,0002%
280	0,7671	40,0813	40,0809	40,0803	0,0009%
308	0,8438	37,3331	37,3331	37,3324	0,0002%
336	0,9205	34,8532	34,8530	34,8523	0,0006%
364	0,9973	32,5883	32,5883	32,5875	0,0002%

TABLEAU 2.6: Différentes évolutions de puissances résiduelles selon les méthodes de calcul utilisées, de 5 à 60 ans.

temps (jours)	temps (années)	Énergie en $\frac{W}{grappe}$			Différence en % tableur vs DRAGON (WIMS)
		WIMS sur DRAGON	WIMS sur tableur	Liste étendue sur tableur	
1852	5,07	1,7862	1,7861	1,7859	0,0086%
3650	10	0,5909	0,5907	0,5908	0,0266%
5475	15	0,5232	0,5231	0,5233	0,0296%
7300	20	0,5337	0,5335	0,5337	0,0295%
9125	25	0,5537	0,5536	0,5538	0,0284%
10950	30	0,5719	0,5718	0,5720	0,0279%
12775	35	0,5864	0,5863	0,5865	0,0266%
14600	40	0,5975	0,5973	0,5976	0,0264%
16425	45	0,6056	0,6054	0,6057	0,0258%
18250	50	0,6112	0,6111	0,6114	0,0249%
20075	55	0,6149	0,6148	0,6151	0,0256%
21900	60	0,6171	0,6169	0,6172	0,0254%

Les tableaux 2.5 et 2.6 permettent de visualiser d'un seul coup d'oeil que les évaluations de puissances résiduelles sont correctement calculées dans les deux cas (la première année, et les 60 suivantes). En effet, la différence entre les calculs n'exède pas 0,0006%<sup>28</sup> la première année : ce qui est négligeable. Si la différence croît légèrement par la suite,

<sup>28</sup>La différence vis à vis du cas normal est toujours calculé de cette manière dans notre rapport :  $100 \cdot \frac{(Valeur_{comparée} - Valeur_{normale})}{Valeur_{normale}}$



c'est essentiellement dû à la différence qui existe entre les valeurs de  $\lambda$  utilisées par DRAGON et celles que nous avons rentrées dans le tableur. Ces dernières étant systématiquement arrondies.

En fait, nous nous sommes aperçu que le prométhium 148m à une demie vie, selon DRAGON, de 72822100 secondes (soit 822 jours environ) contre 3567456 secondes (soit 41,29 jours) dans notre référence de l'« *U.S. Nuclear Data Network* » [Jagdish, 1995]. Cette différence est vraisemblablement due à la nécessité de condensation des bibliothèques : en effet, les données générés par la bibliothèque WIMS sont incomplètes. En fait, elles contiennent les seuls isotopes ayant un impact neutronique. Aussi certaines demies-vies sont-elles mise à niveau pour compenser la perte d'information liée à l'omission d'une certaine population isotopique. Nous avons eu à négliger l'impact de la contribution du prométhium 148m pour arriver à des évaluations cohérentes de la puissance résiduelle telles que celles présentées ici. Si nous avons négligé cette différence ici, c'est parce que nous cherchions à valider la mécanique de calcul des modules, et non approuver telles ou telles bibliothèques pour le calcul de puissance résiduelle.

Cependant, cela illustre bien l'impact que peut avoir même un seul isotope mal évalué, sur le résultat. À cause de cette demie-vie mal estimée<sup>29</sup> l'effet de l'isotope est prolongé et la valeur de densité de puissance résiduelle calculée par notre tableur est surestimée *par rapport à celle calculée par EDC*. Mais quelle est la bonne estimation ? C'est ce que nous allons étudier dans le chapitre 5.

D'autre part, bien que les résultats ne soient pas égaux, ceux des modèles WIMS et WIMSD4 sont du même ordre de grandeur. Cependant, les-dits ordres de grandeur ne sont pas réalistes, ils se basent sur les valeurs d'énergies calculées par différence de masse et sur les bibliothèques de bases, ce qui est insuffisant pour un calcul précis, ainsi que nous le démontrerons dans le chapitre 4.

---

<sup>29</sup>Ou, estimé de manière différente, au choix...

Nous en avons conclu que notre module calcule correctement la puissance résiduelle, ou en tout cas, l'évalue correctement à partir des données que nous lui fournissons<sup>30</sup>.

## 2.4 Limites de nos outils

Plusieurs interrogations ont vu le jour lorsque nous avons essayé de regarder de plus près les facteurs limitant nos outils de calcul. Présentons les succinctement ici.

### 2.4.1 Limites liées aux données d'entrée

Il est intéressant de noter que les calculs présentés au chapitre précédent (2.2) sont effectués à partir des concentrations des différents isotopes. Ils sont donc indépendants du flux et de toutes autres approximations de géométrie ou méthode de calcul numérique, si l'on part du principe que nos concentrations isotopiques sont correctement évaluées. Deux erreurs de données peuvent être introduites par notre démarche, à savoir :

- Valeurs des énergies de décroissance mal évaluées
- Valeurs de concentrations isotopiques mal évaluées

Nous allons donc devoir évaluer la justesse des calculs de concentrations isotopiques en cœur et l'influence que peut avoir le niveau de puissance sur les concentrations, donc par extension, sur la puissance résiduelle. En d'autres termes : notre calcul de puissance résiduelle est-il découplé du calcul de flux.

Mais un travail important de compréhension des contributions en puissance résiduelle suivant les types de rayonnements sera également à mettre en place pour être assuré que nos énergie de décroissance sont les bonnes.

---

<sup>30</sup>Si les données sont éronnées comme c'est le cas pour le prométhium 148, le calcul l'est forcément.

### 2.4.2 Limites dues aux chaînes isotopiques

Le choix isotopique lié aux bibliothèques WIMS et WIMSD4 utilisées par DRAGON est limitatif de deux manières :

- Toutes les longueurs de chaînes de désintégrations ne sont représentées dans aucun des 2 types de bibliothèques. Ainsi, certains isotopes sont considérés comme stables (ce qui clôt une chaîne) car leur demi-vie est trop importante par rapport à la durée de séjour en cœur du combustible. Or ceci est une source d'erreur, car nous utilisons la bibliothèque associée à DRAGON hors de son contexte habituel de calcul, autrement dit, hors du cœur.
- Parmi tous les isotopes dont nous connaissons l'évolution de la concentration isotopique, plusieurs n'ont pas d'énergie de décroissance associée dans nos données, alors qu'ils sont instables et dégagent de l'énergie.

C'est pour s'affranchir de ces inconnues que nous avons évalué, par tableur, les résultats que devaient nous donner EQV et EDC : si nous excluons les isotopes inconnus des bibliothèques (WIMS ou WIMSD4) et ceux pour lesquels nous n'avons pas de données ; dans quelle mesure notre calcul (forcément sous-estimé) est-il fiable ? Nous avons vu précédemment qu'il l'est avec un faible pourcentage d'erreur. Il faut maintenant intégrer ces différences pour obtenir une évaluation correcte de la puissance résiduelle.

L'exécution du module EQV compare et trie les isotopes de la bibliothèque considéré par rapport à une liste d'isotopes dont nous connaissons les valeurs d'énergies de décroissance. Elle ne garde que ceux présents dans les deux listes.[Ramamoorthy, 2005] Suivant le type de bibliothèque sélectionnée, nous n'avons pas les mêmes isotopes conservés à l'issue de l'exécution de EQV, car les données contenues dans l'une ou l'autre des bibliothèques sont différentes. Nous avons donc rassemblé les isotopes sélectionnés selon la bibliothèque utilisée :

- Le tableau 2.7 pour les bibliothèques de type WIMS.
- Le tableau 2.8 pour les bibliothèques de type WIMSD4.

TABLEAU 2.7 Noms des isotopes de la bibliothèqueWIMS sélectionnés par EQV.

Noms								
H1H2O	<sup>4</sup> <sub>2</sub> He	<sup>10</sup> <sub>5</sub> B	<sup>16</sup> <sub>8</sub> O	<sup>52</sup> <sub>24</sub> Cr	<sup>56</sup> <sub>26</sub> Fe	<sup>58</sup> <sub>28</sub> Ni	<sup>83</sup> <sub>36</sub> Kr	<sup>91</sup> <sub>40</sub> Zr
<sup>93</sup> <sub>41</sub> Nb	<sup>95</sup> <sub>42</sub> Mo	<sup>99</sup> <sub>43</sub> Tc	<sup>101</sup> <sub>44</sub> Ru	<sup>103</sup> <sub>44</sub> Ru	<sup>103</sup> <sub>45</sub> Rh	<sup>105</sup> <sub>45</sub> Rh	<sup>105</sup> <sub>46</sub> Pd	<sup>108</sup> <sub>46</sub> Pd
<sup>109</sup> <sub>47</sub> Ag	<sup>112</sup> <sub>48</sub> Cd	<sup>113</sup> <sub>48</sub> Cd	<sup>115</sup> <sub>49</sub> In	<sup>127</sup> <sub>53</sub> I	<sup>135</sup> <sub>53</sub> I	<sup>131</sup> <sub>54</sub> Xe	<sup>135</sup> <sub>54</sub> Xe	<sup>133</sup> <sub>55</sub> Cs
<sup>134</sup> <sub>55</sub> Cs	<sup>135</sup> <sub>55</sub> Cs	<sup>143</sup> <sub>60</sub> Nd	<sup>145</sup> <sub>60</sub> Nd	<sup>147</sup> <sub>61</sub> Pm	<sup>147</sup> <sub>62</sub> Sm	<sup>149</sup> <sub>62</sub> Sm	<sup>150</sup> <sub>62</sub> Sm	<sup>151</sup> <sub>62</sub> Sm
<sup>152</sup> <sub>62</sub> Sm	<sup>153</sup> <sub>63</sub> Eu	<sup>154</sup> <sub>63</sub> Eu	<sup>155</sup> <sub>63</sub> Eu	<sup>155</sup> <sub>64</sub> Gd	<sup>157</sup> <sub>64</sub> Gd	<sup>160</sup> <sub>66</sub> Dy	<sup>161</sup> <sub>66</sub> Dy	<sup>162</sup> <sub>66</sub> Dy
<sup>163</sup> <sub>66</sub> Dy	<sup>164</sup> <sub>66</sub> Dy	<sup>165</sup> <sub>67</sub> Ho	<sup>234</sup> <sub>92</sub> U	<sup>235</sup> <sub>92</sub> U	<sup>236</sup> <sub>92</sub> U	<sup>238</sup> <sub>92</sub> U	<sup>237</sup> <sub>93</sub> Np	<sup>239</sup> <sub>93</sub> Np
<sup>239</sup> <sub>94</sub> Pu	<sup>240</sup> <sub>94</sub> Pu	<sup>241</sup> <sub>94</sub> Pu	<sup>242</sup> <sub>94</sub> Pu	<sup>241</sup> <sub>95</sub> Am	<sup>242</sup> <sub>95</sub> Am	<sup>243</sup> <sub>95</sub> Am		

TABLEAU 2.8 Noms des isotopes de la bibliothèqueWIMSD4 sélectionnés par EQV.

Noms								
H1H2O	H2D2O	<sup>4</sup> <sub>2</sub> He	<sup>10</sup> <sub>5</sub> B	<sup>11</sup> <sub>5</sub> B	<sup>16</sup> <sub>8</sub> O	<sup>52</sup> <sub>24</sub> Cr	<sup>56</sup> <sub>26</sub> Fe	
<sup>58</sup> <sub>28</sub> Ni	<sup>83</sup> <sub>36</sub> Kr	<sup>95</sup> <sub>42</sub> Mo	<sup>99</sup> <sub>43</sub> Tc	<sup>101</sup> <sub>44</sub> Ru	<sup>103</sup> <sub>44</sub> Ru	<sup>106</sup> <sub>44</sub> Ru	<sup>103</sup> <sub>45</sub> Rh	
<sup>105</sup> <sub>45</sub> Rh	<sup>105</sup> <sub>46</sub> Pd	<sup>107</sup> <sub>46</sub> Pd	<sup>108</sup> <sub>46</sub> Pd	<sup>109</sup> <sub>47</sub> Ag	<sup>113</sup> <sub>48</sub> Cd	<sup>115</sup> <sub>49</sub> In	<sup>125</sup> <sub>51</sub> Sb	
<sup>127</sup> <sub>52</sub> Te M	<sup>127</sup> <sub>53</sub> I	<sup>135</sup> <sub>53</sub> I	<sup>131</sup> <sub>54</sub> Xe	<sup>134</sup> <sub>54</sub> Xe	<sup>135</sup> <sub>54</sub> Xe	<sup>136</sup> <sub>54</sub> Xe	<sup>133</sup> <sub>55</sub> Cs	
<sup>134</sup> <sub>55</sub> Cs	<sup>135</sup> <sub>55</sub> Cs	<sup>137</sup> <sub>55</sub> Cs	<sup>143</sup> <sub>60</sub> Nd	<sup>145</sup> <sub>60</sub> Nd	<sup>147</sup> <sub>61</sub> Pm	<sup>148</sup> <sub>61</sub> Pm	<sup>148</sup> <sub>61</sub> Pm M	
<sup>149</sup> <sub>61</sub> Pm	<sup>147</sup> <sub>62</sub> Sm	<sup>148</sup> <sub>62</sub> Sm	<sup>149</sup> <sub>62</sub> Sm	<sup>150</sup> <sub>62</sub> Sm	<sup>151</sup> <sub>62</sub> Sm	<sup>152</sup> <sub>62</sub> Sm	<sup>151</sup> <sub>63</sub> Eu	
<sup>152</sup> <sub>63</sub> Eu	<sup>153</sup> <sub>63</sub> Eu	<sup>154</sup> <sub>63</sub> Eu	<sup>155</sup> <sub>63</sub> Eu	<sup>154</sup> <sub>64</sub> Gd	<sup>155</sup> <sub>64</sub> Gd	<sup>156</sup> <sub>64</sub> Gd	<sup>157</sup> <sub>64</sub> Gd	
<sup>158</sup> <sub>64</sub> Gd	<sup>160</sup> <sub>66</sub> Dy	<sup>161</sup> <sub>66</sub> Dy	<sup>162</sup> <sub>66</sub> Dy	<sup>163</sup> <sub>66</sub> Dy	<sup>164</sup> <sub>66</sub> Dy	<sup>165</sup> <sub>67</sub> Ho	<sup>166</sup> <sub>68</sub> Er	
<sup>167</sup> <sub>68</sub> Er	<sup>234</sup> <sub>92</sub> U	<sup>235</sup> <sub>92</sub> U	<sup>236</sup> <sub>92</sub> U	<sup>237</sup> <sub>92</sub> U	<sup>238</sup> <sub>92</sub> U	<sup>237</sup> <sub>93</sub> Np	<sup>239</sup> <sub>93</sub> Np	
<sup>238</sup> <sub>94</sub> Pu	<sup>239</sup> <sub>94</sub> Pu	<sup>240</sup> <sub>94</sub> Pu	<sup>241</sup> <sub>94</sub> Pu	<sup>242</sup> <sub>94</sub> Pu	<sup>241</sup> <sub>95</sub> Am	<sup>242</sup> <sub>95</sub> Am	<sup>242</sup> <sub>95</sub> Am M	
<sup>242</sup> <sub>96</sub> Cm	<sup>243</sup> <sub>96</sub> Cm	<sup>244</sup> <sub>96</sub> Cm						

Ces deux listes sont particulièrement limitées et ne prennent en compte qu'une toute petite quantité d'isotopes. Nous nous devons d'étudier en détail l'impact de ces isotopes sur la puissance résiduelle et de savoir s'ils sont ou non suffisants pour évaluer correctement cette dernière.

## 2.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté et validé les outils qui nous permettront d'effectuer nos analyses. Bien que tout semble fonctionner parfaitement en terme logiciel, plusieurs questions ont été abordées en fin de chapitre, quant à la justesse de la méthode. La seule façon d'être certain de nos résultats est de faire le tour de deux questions essentielles :

- Validation des évaluations de concentrations : les calculs de concentrations isotopiques sont ils adaptés ou non à une utilisation pour l'étude de la puissance résiduelle, si non, comment faire en sorte qu'ils le soient ?
- Validation du suivi isotopique : les concentrations isotopiques évaluées dans le cadre des calculs sur DRAGON sont elles ou non en nombre suffisant pour représenter les familles isotopiques responsables de la majeure partie du dégagement de puissance. Si non, quels sont les isotopes manquants et comment les ajouter ?

Les deux chapitres suivant vont s'attacher à répondre à ces 2 questions.

## CHAPITRE 3

### EFFET DE LA PUISSANCE EN CŒUR SUR L'INVENTAIRE ISOTOPIQUE

Nous l'avons précisé au chapitre précédent : si notre module de calcul est informatiquement parlant correct, les causes probables de différences entre la réalité et notre modèle ne peuvent provenir que des données d'entrées. Ici, nous avons choisi de nous intéresser à la première cause d'incertitude possible : celles liées aux calculs de concentrations isotopiques, et plus particulièrement à une facette de la question : celle de l'impact des variations de puissance sur la grappe durant sa combustion.

En effet, qu'elles seraient les raisons qui ne permettraient pas d'évaluer correctement les concentrations isotopiques : seraient-elles logicielles ou expérimentales ?

Dans tous les cas, que le calcul soit ou non parfait, il convient de s'assurer que nos conditions de calcul, nos hypothèses en fait, soient correctement choisies. Il convient aussi de commencer la validation de la démarche proposée au chapitre 2.1.2.1 par son étape initiale. C'est pourquoi nous allons nous y intéresser dès maintenant.

#### 3.1 Introduction au rôle de la puissance en cœur sur l'inventaire isotopique

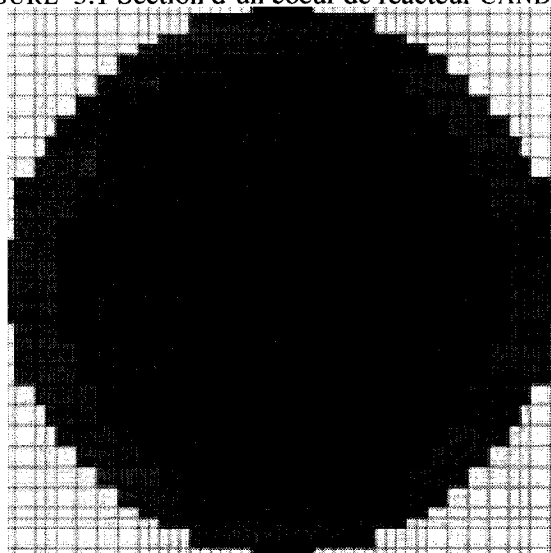
##### 3.1.1 Présentation du problème

Le cœur d'un réacteur à eau lourde de filière canadienne actuelle (PHWR du type CANDU-6 ou ACR-700) tel que nous l'étudions est constitué de plusieurs centaines de canaux eux-mêmes contenant plusieurs grappes. Dans le réacteur, le flux neutronique se visualise graphiquement en une forme bosselée qui, nulle à proximité des bords, varie dans l'espace et n'est pas du tout uniforme. *Aplatir* le flux revient à essayer éviter tous minimums ou maximums locaux dans le réacteur. Comme la centrale fonctionne

dans des limites très précises de puissance (pour des raisons de sécurité) si le flux est parfaitement aplati cela veut dire que le maximum de puissance n'est pas si éloigné de la moyenne et que nombreuses sont les grappes de combustible qui fonctionnent à leur rendement maximum, entre puissance et sécurité. Cependant, il est impossible d'aplatir parfaitement le flux et les différentes grappes, notamment sur les bords du cœur, ne sont donc pas soumises aux mêmes puissances neutroniques.

La figure 3.1 présente une section de cœur de réacteur CANDU-6, nous y observons 2 zones : l'une centrale regroupant les canaux où sont installées les grappes de combustibles et une autre, périphérique, où se situe le réflecteur neutronique<sup>1</sup>. Cette figure

FIGURE 3.1 Section d'un cœur de réacteur CANDU-6.



permet de visualiser la taille d'un réacteur nucléaire par rapport à une grappe de combustible (située dans un de ces minuscules intervalles du quadrillage) et de comprendre facilement que le flux neutronique ne peut être homogène sur de telles dimensions.

---

<sup>1</sup>Le réflecteur neutronique, dans un réacteur nucléaire, permet de contenir les neutrons dans le réacteur. Il favorise ainsi la réaction en chaîne.

La puissance associée à ce flux<sup>2</sup> varie de deux façons : radialement et axialement. Par exemple radialement, la puissance canal peut varier d'un facteur 3. Un calcul simulé grâce au logiciel DONJON nous a donné une puissance de canal maximum de 6605kW contre une minimum de 2176kW<sup>3</sup>. [Varin et al., 2002, Varin et Marleau, 2004]

La combustion de l'oxyde d'uranium et sa variation isotopique selon le temps sont fonction de cette puissance, ainsi la gestion du combustible utilise-t-elle le taux de combustion qui relie temps et puissance et le ramène à la masse (exprimé en MWj/t ou kWj/kg, ce qui est équivalent). Ainsi, ce taux de combustion<sup>4</sup> symbolise l'énergie extraite du combustible par unité de masse, mais il peut être le résultat de couples puissance-temps différents. En effet, toutes les grappes sorties d'un réacteur CANDU-6 ont un burnup à peu près équivalent à  $8000 \frac{MWj}{t}$ , bien que leurs temps de séjour en cœur aient été différents. En s'arrêtant à cette notion de burnup et en gommant celle de temps et de puissance, on oublie du même coup les effets d'historiques dans le réacteur (variation de puissance dans le temps et l'espace).

Or, on sait que la concentration du xénon 135 par exemple (si souvent suivi pour son rôle de poison neutronique dans le réacteur) dépend du flux neutronique. D'autre part, les constantes de temps de certains isotopes sont suffisamment faibles pour qu'une variation de temps de séjour en cœur ait une influence. Un réacteur plutonigène militaire joue d'ailleurs sur cette propriété pour produire un plutonium exempt de  $^{240}_{94}Pu$ .

<sup>2</sup>Il est à noter que notre étude considère comme synonymes les deux notions de *niveaux de flux*, et *puissances neutroniques*.

<sup>3</sup>En générale, la répartition de la puissance axiale est de forme sinusoïdale. Par exemple, une distribution symétrique de puissance le long du canal, avec un écart type évalué à 26% de la moyenne (550kW) et une médiane à 610kW ; nous aurions les puissances de grappes suivantes (en kW pour chacune des 12 grappes) :

280 450 600 620 650 700 700 650 620 600 450 280

<sup>4</sup>L'anglicisme *burnup* est également utilisé.



### 3.1.2 Hypothèses et questionnement

Dans quelles mesures ces différences sont-elles d'importance ? Un seul cas type de puissance est-il suffisant pour représenter l'ensemble des grappes sorties du réacteur et étudier l'évolution de leur inventaire isotopique dans le temps, hors du cœur ?

Comme nous avons supposé au point 2.3, nos calculs de puissance résiduelle ne sont valables que si nos concentrations isotopiques sont correctement évaluées. Mais que signifie *correctement évalué* ? Statistiquement, pouvons-nous créer une grappe type, modèle moyen de ce que sont les concentrations issues du cœur du réacteur. Individuellement, devons-nous étudier plusieurs types de grappes suivant les puissances auxquelles elles ont été brûlées ?

Dans ce chapitre, nous nous proposons d'étudier l'influence de la puissance neutronique sur l'inventaire isotopique à burnup de sortie constant<sup>5</sup>. Ceci nous permettra de construire une démarche d'étude relative à la puissance résiduelle, elle même calculée par nos modules EQV et EDC.

Ainsi, nous nous intéresserons dans un premier temps à l'influence qu'a le niveau de puissance sur la valeur propre de la cellule infinie (dans notre cas, nous calculons le coefficient de multiplication effectif ( $k_{eff}$ ) qui englobe aussi la notion de fuite dans le bilan neutronique). Puis nous identifierons différents isotopes sensibles aux variations de puissances. Le but final est d'aboutir à une évaluation d'incertitude sur l'inventaire isotopique de l'ensemble du cœur.

### 3.1.3 Remarque concernant les méthodes de calculs

Les 5 niveaux de puissances qu'il nous a fallu choisir pour cette étude, viennent de la connaissance des conditions usuelles d'exploitation des réacteurs de type CANDU-6 et

---

<sup>5</sup>Les valeurs de burnup de sortie choisies sont celle usuelles à savoir  $8000 \frac{MWj}{t}$  pour un Canadian Deuterium-Uranium et  $21000 \frac{MWj}{t}$  pour un Advance CANDU Reactor.

ont été construits en puissances relatives par rapport à la valeur nominale.<sup>6</sup>. Ainsi nous avons :

- un niveau de puissance nominale à 100% de puissance (cas appelé Norm).
- deux niveaux de puissance correspondant aux extremums locaux dans un réacteur fonctionnant à la puissance nominale (cas 02 et 03).[Varin et Marleau, 2004]
- deux autres niveaux plus extrêmes pour borner notre comparaison. Ces valeurs de puissances limites peuvent s'obtenir, par exemple, sur les temps courts d'une transitoire de puissance durant l'opération d'un réacteur (cas 01 et 04).

L'ensemble des autres conditions de calculs présentées au chapitre 2.3.1 ont été conservées. Mais nous avons également choisi de nous intéresser, par curiosité scientifique, à l'étude d'une autre cellule de type PHWR, à savoir celle d'un réacteur de type ACR-700.

Ce réacteur utilise l'eau légère comme caloporteur, mais conserve l'eau lourde comme modérateur. La grappe est composée elle aussi de 43 crayons comme la grappe CANFLEX que nous étudions sur le réacteur CANDU-6. Cependant, son crayon central est de taille légèrement supérieure, il contient un mélange d'uranium naturel et de dysprosium<sup>7</sup> à hauteur de 10%. Les 42 autres crayons sont constitués d'uranium enrichi à 2,5%.

La figure 3.2 illustre bien la différence de proportion entre les cellules de réacteur CANDU-6 et ACR-700. Le réseau est donc légèrement plus serré dans le cas de l'ACR-700 : le pas de réseau est de 22 cm contre 28,5 cm.

Cela influence beaucoup le comportement neutronique du réacteur, car joue sur le libre parcours moyen<sup>8</sup> des neutrons. On parle d'ailleurs de réacteur surmodéré dans le cas du CANDU-6 alors que l'ACR-700 a volontairement été conçu sous-modéré<sup>9</sup>. Le

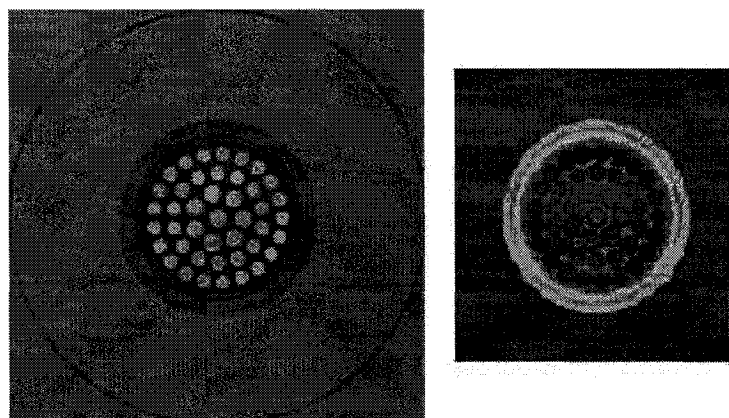
<sup>6</sup>Puissance nominale par canal : 615kW pour un CANDU-6 et 780kW pour un ACR-700

<sup>7</sup>En fait, il s'agit de dysprosium naturel composé de plusieurs isotopes ( $^{160}_{66}\text{Dy}$ ,  $^{161}_{66}\text{Dy}$ ,  $^{162}_{66}\text{Dy}$ ,  $^{163}_{66}\text{Dy}$ ,  $^{164}_{66}\text{Dy}$ ), tous stables. Les isotopes du dysprosium sont des poisons neutroniques, car leurs sections efficaces d'absorption sont très grandes. Lorsqu'un des isotopes du dysprosium absorbe un neutron il reste, en général, stable : ainsi du  $^{160}_{66}\text{Dy}$  devient-il du  $^{161}_{66}\text{Dy}$  par exemple.

<sup>8</sup>Le libre parcours moyen des neutrons est la distance moyenne que parcourt un neutron issu d'une fission jusqu'à une absorption (qu'elle aboutisse à une fission ou non).

<sup>9</sup>Cette sous-modération permet d'obtenir un coefficient de réactivité du vide négatif. En effet, le caloporteur a également pour rôle de finir le ralentissement des neutrons. Ainsi, lorsque le réacteur fait face à

FIGURE 3.2 Cellule élémentaire dans un réacteur CANDU-6 (à droite) ou ACR-700 (gauche).



réacteur ACR étant appelé à fonctionner à un niveau de flux plus élevé, nous avons donc choisi ici de fixer nos puissances de comparaisons en *puissances relatives* par rapport à la valeur nominale. Ces choix sont illustrés dans le tableau 3.1.

TABLEAU 3.1 Choix des puissances

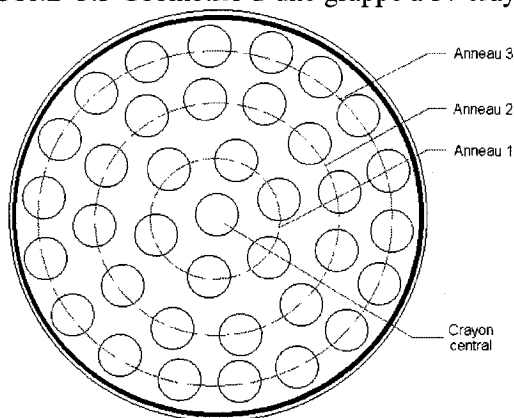
Pourcentage de la puissance nominale	CANDU			ACR		
	Puissance massique ( $\frac{MW}{t}$ )	Puissance grappe (kW)	Nom	Puissance massique ( $\frac{MW}{t}$ )	Puissance grappe (kW)	Nom
156,40%	50,00	962	CANDU04	60,00	1218	ACR04
115,73%	37,00	712	CANDU03	44,00	893	ACR03
100,00%	31,97	615	CANDU Norm	38,42	780	ACR Norm
37,54%	12,00	231	CANDU02	14,50	294	ACR02
12,51%	4,00	77	CANDU01	5,00	102	ACR01

une grosse perte de caloporteur, les neutrons ne sont plus assez ralentis pour interagir avec le combustible et la réaction en chaîne s'arrête d'elle-même.

Nous avons également conservé les bibliothèques de bases pour cette étude, l'usage de ces bibliothèques avec DRAGON étant validé, nous supposons par avance qu'aucune étude ultérieure (telle celle présentée au chapitre 4) de leurs compositions ne nous amènera à y intégrer des isotopes particulièrement contribuant en termes neutroniques.

Notre étude, présentée dans ce chapitre, s'attache notamment à contrôler l'impact de la puissance neutronique sur la composition isotopique. Un isotope sans rôle neutronique ne serait être concerné par ces calculs. Dépendamment de la position du crayon dans la grappe, l'intensité du flux varie. Cependant, la répartition régulière des crayons laisse présager une équirépartition du flux telle que chaque crayon d'un anneau<sup>10</sup> est soumis au même flux. C'est d'ailleurs pour cette raison que le calcul sous DRAGON se fait avec 4 mélanges différentes : une par groupe de crayon. Les puissances indiquées au tableau

FIGURE 3.3 Géométrie d'une grappe à 37 crayons



3.1 concernent la moyenne sur chaque grappe. Nous avons choisi d'effectuer notre étude sur les grappes et non les crayons, car le stockage des grappes se fait sans destruction de la structure de celles-ci.

<sup>10</sup>Nous appelons ici *anneau* l'ensemble des crayons dont les centres sont tous situés à la même distance du centre de la grappe, comme présenté à la figure 3.3.

Ce choix n'introduit cependant aucune erreur de calcul, en effet DRAGON évalue cette variation locale de flux dans la grappe et connaît donc les variations de concentration isotopique locale dans la grappe, nous avons simplement choisi de ne pas utiliser ces données en particulier, mais simplement leurs moyennes sur la grappe.

### 3.1.4 Discrétisation

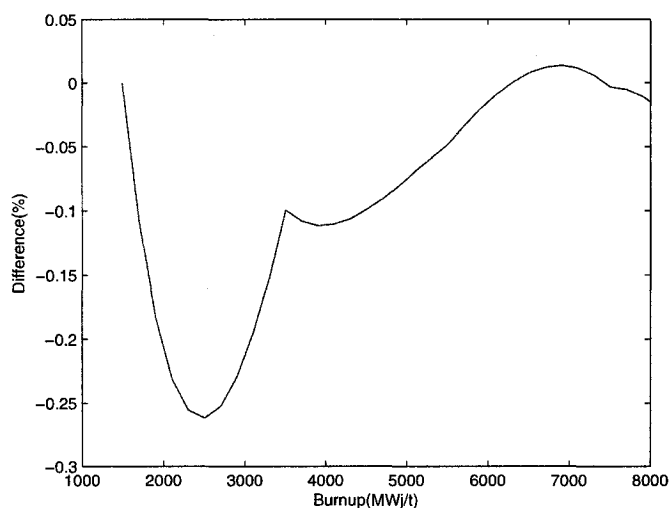
Pour un calcul avec ce logiciel, nous devons discrétiser le temps de séjour en cœur. Une étude précédente [Varin et Marleau, 2004] avait démontrée l'intérêt d'affiner la discrétisation lors des premiers temps de combustion (afin de parfaitement modéliser le pic dû au plutonium), puis la possibilité de limiter le nombre d'itérations lors de l'approche de la valeur de burnup de sortie pour les grappes (zone d'évolution quasiment linéaire du  $k_{eff}$ ). Nous utilisons différentes puissances, mais des burnups de sortie constants, donc idéaux pour des résultats comparables. Toutes les courbes présentées dans ce chapitre sont tracées en fonction du burnup.

La discrétisation choisie a été construite autour de celle utilisée par une étude précédente.[Varin et Marleau, 2004] Il s'agissait d'un calcul sur CANDU-6, le choix avait alors été fait de discrétiser finement sur les premiers  $1500 \frac{MW}{t}$  et notamment autour du pic du plutonium caractéristique de ce type de réacteur. Il nous est vite apparu que la répartition proposée était insuffisante notamment pour l'intervalle  $[0 - 500] \frac{MW}{t}$ . Nous avons donc affiné la discrétisation pour finalement obtenir une répartition très dense sur les premiers  $\frac{MW}{t}$  puis plus dilué une fois le pic du plutonium passé. Ainsi avons-nous opté pour les pas de burnup suivants :

Intervalles (bornes en $\frac{MWj}{t}$ )	Pas de burnup en $\frac{MWj}{t}$
0-80	: 5
80-400	: 20
400-800	: 100
800-1200	: 20
1200-1500	: 100
1500-Burnup de sortie	: 2000

En effet, lorsque nous passons ce pic, le comportement du  $k_{eff}$  devient quasiment linéaire. Ce qui veut dire que la création et disparition de matière fissile a atteint un équilibre. [Rozon, 2005b]

FIGURE 3.4 Erreur sur le  $k_{eff}$  générée par l'approximation linéaire entre 1500 et 8000  $\frac{MWj}{t}$  sur un CANDU-6



Pour justifier notre approximation, nous avons tracé à la figure 3.4 la différence de  $k_{eff}$  calculé avec un modèle fin<sup>11</sup> par rapport à un modèle plus grossier, pour le même

<sup>11</sup>Pas de burnup, pour le modèle fin, de  $200 \frac{MWj}{t}$  au lieu de 2000 sur le dernier intervalle, à savoir :

flux, sur un CANDU-6. Les 1500 premiers  $\frac{MW_j}{t}$  étant calculé de la même manière, avec le découpage présenté précédemment (d'où une erreur, ou plutôt une différence entre deux approximations, nulle avant  $1500\frac{MW_j}{t}$ ).

Evidement, une erreur de 0,25% maximum a été considérée comme négligeable. Il est intéressant de noter que cette erreur varie énormément entre 1700 et  $3000\frac{MW_j}{t}$ , cela est vraisemblablement dû à un isotope particulier ayant une grande influence sur le  $k_{eff}$ . D'où l'intérêt de l'étude particulière des isotopes présentée au chapitre 4.

### 3.2 Variation du $k_{eff}$ en fonction du niveau de puissance

Lorsque l'on s'intéresse à la neutronique du réacteur, le coefficient de multiplication effectif(ou "K effectif", noté par la suite :  $k_{eff}$ ), est un excellent indicateur de réactivité potentielle du combustible<sup>12</sup>. Or cette valeur évolue plus ou moins rapidement en fonction de la puissance sous laquelle on "brûle" le combustible. En effet, elle dépend du burnup c'est à dire de la puissance et du temps.[Rozon, 2005c] Nous allons donc, dans cette partie, évaluer cette variation.

#### 3.2.1 Vue d'ensemble

Regardons dans un premier temps l'évolution du coefficient de multiplication effectif dans son ensemble, ce qui est fait dans les figures 3.5 et 3.6.

Nous remarquons que :

- La variation de  $k_{eff}$  pour un CANDU-6 passe par un maximum local, alors que celle de l'ACR-700 est quasiment linéaire. Ce résultat classique provient de l'importance

---

[1500 – 8000]

<sup>12</sup>le  $k_{eff}$  est obtenu par résolution de l'équation de diffusion :  $\mathbf{M}\vec{\Phi} = \lambda\mathbf{F}\vec{\Phi}$  [Rozon, 2005a]. Si cette valeur est rapportée à un réseau infini on aboutit au calcul de la réactivité du réseau avec  $\rho_{\infty} = 1 - \frac{1}{k_{\infty}}$  [Rozon, 2005c]

FIGURE 3.5 coefficient de multiplication effectif pour un CANDU-6 :

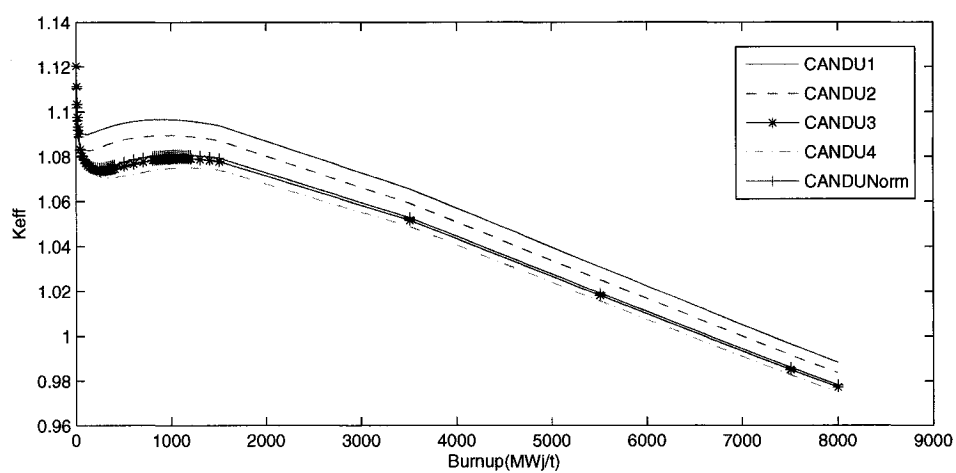
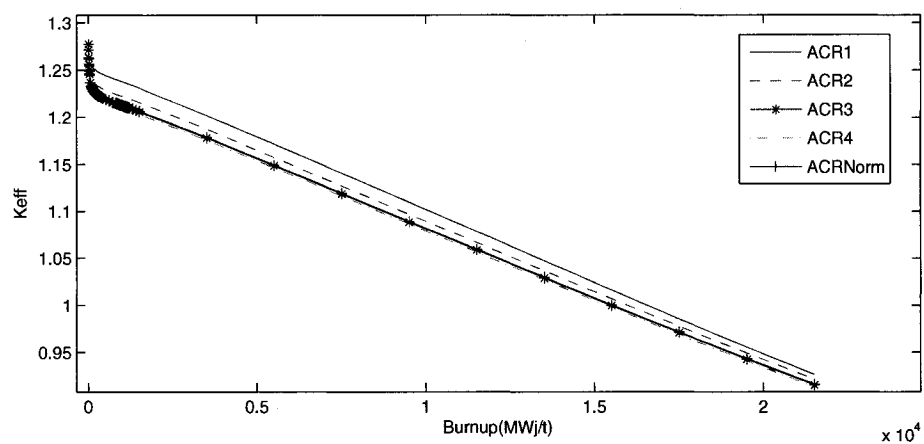


FIGURE 3.6 coefficient de multiplication effectif pour un ACR-700 :





de la contribution du plutonium 239 dans la combustion par rapport à celle de l'uranium 235 (plus faible dans l'ACR-700 à cause de l'enrichissement de départ en matière fissile plus important de ce dernier).<sup>13</sup>

- Nous remarquons également que la variation générale (et ce, dans les 2 cas) est inversement proportionnelle au taux de combustion (le coefficient de multiplication effectif est plus faible pour un taux de combustion plus élevé). Ainsi, un combustible brûlé à plus forte puissance atteindra sa limite utile en cœur plus rapidement (problématique bien connue en gestion du combustible).
- La combustion en cœur atteint  $20000 \frac{MWj}{t}$  pour un ACR-700 alors qu'elle n'est que de  $8000 \frac{MWj}{t}$  pour un CANDU-6, mais si l'on observe simplement les 8000 premiers  $\frac{MWj}{t}$  des grappes issue de l'ACR-700, nous retrouvons plusieurs similitude de comportement avec celle sortie d'un CANDU-6

### 3.2.2 Couplage des notions de $k_{eff}$ et burnup

La figure 3.7 illustre la variation de différence de  $k_{eff}$  en fonction du taux de combustion selon le niveau de flux par rapport à la puissance nominale.

Nous remarquons alors que :

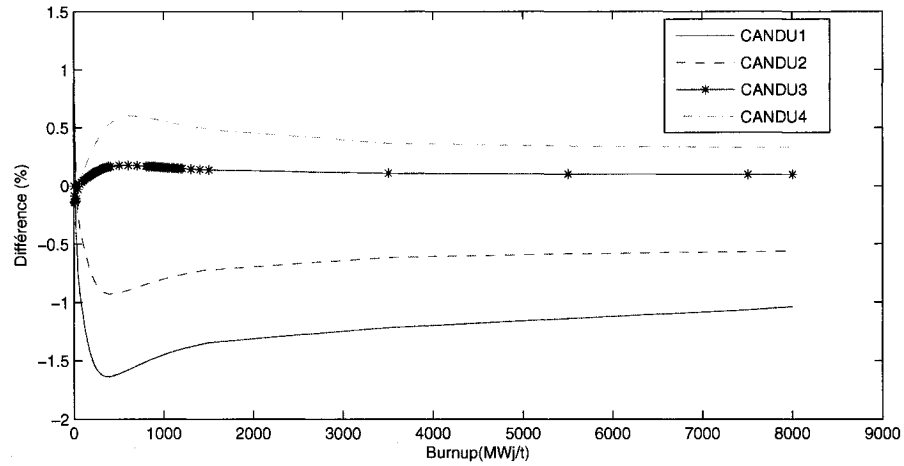
- L'erreur du  $k_{eff}$  autour de la valeur nominale suit la même variation en fonction du niveau de puissance que le  $k_{eff}$  lui-même.
- Une figure similaire peut être obtenue pour l'ACR-700, nous y remarquons que l'effet de la modification de puissance, pour un même burnup de  $8000 \frac{MWj}{t}$ , est plus prononcé aux faibles valeurs de flux pour ce réacteur<sup>14</sup>.

Le tableau 3.2 nous permet d'illustrer la seconde remarque, et également d'aller plus loin.

<sup>13</sup>Le plutonium étant non naturel, il apparaît progressivement, contribuant de plus en plus à la valeur de  $k_{eff}$  jusqu'à saturation (ce comportement est très visible aux environs de 1000-1500 MWj/t, suivant les niveaux de puissances, dans le CANDU-6), puis ne suffit plus à contrer la diminution générale du coefficient de multiplication effectif qui évolue alors de façon linéaire décroissante.

<sup>14</sup>Même si, dans les deux cas, lorsque la puissance augmente le  $k_{eff}$  diminue.

FIGURE 3.7 Variation du coefficient de multiplication effectif pour un CANDU-6 en fonction du burnup



TABEAU 3.2: Calcul de la différence de  $k_{eff}$  en fonction du burnup.

Burnup	Différence de $k_{eff}$				Valeur
	CANDU01	CANDU02	CANDU03	CANDU04	CANDUNorm
0	0,00%	0,00%	0,00%	0,00%	1,12
20	-0,11%	0,33%	-0,13%	-0,43%	1,10
25	-0,34%	0,14%	-0,11%	-0,39%	1,09
45	-0,76%	-0,23%	-0,03%	-0,16%	1,08
65	-0,92%	-0,35%	0,01%	-0,01%	1,08
105	-1,14%	-0,49%	0,05%	0,12%	1,08
205	-1,49%	-0,77%	0,10%	0,30%	1,08
305	-1,62%	-0,90%	0,15%	0,45%	1,08
405	-1,64%	-0,93%	0,17%	0,54%	1,08
505	-1,61%	-0,92%	0,18%	0,59%	1,08

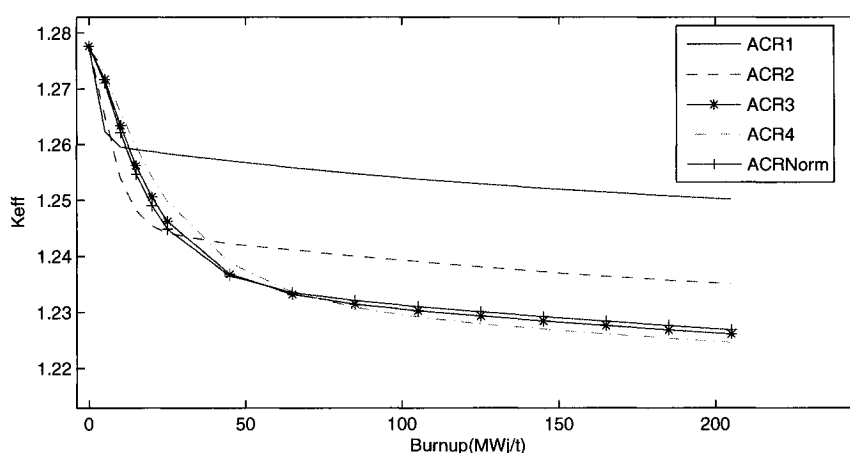
Suite de la page précédente					
1005	-1,45%	-0,80%	0,16%	0,56%	1,08
3505	-1,22%	-0,61%	0,11%	0,37%	1,05
5505	-1,14%	-0,58%	0,10%	0,34%	1,02
7505	-1,06%	-0,56%	0,10%	0,33%	0,99
8000	-1,04%	-0,56%	0,10%	0,33%	0,98
Burnup	Différence de $k_{eff}$				Valeur
$\frac{MW_j}{t}$	ACR01	ACR02	ACR03	ACR04	ACRNorm
0	0,00%	0,00%	0,00%	0,00%	1,28
20	-0,78%	0,28%	-0,12%	-0,43%	1,24
25	-1,09%	0,06%	-0,11%	-0,41%	1,24
45	-1,67%	-0,47%	-0,03%	-0,19%	1,24
65	-1,81%	-0,62%	0,03%	-0,01%	1,23
105	-1,85%	-0,66%	0,06%	0,15%	1,23
205	-1,90%	-0,67%	0,06%	0,18%	1,23
305	-1,96%	-0,71%	0,07%	0,20%	1,22
405	-2,01%	-0,75%	0,07%	0,22%	1,22
505	-2,03%	-0,77%	0,08%	0,24%	1,22
1005	-2,03%	-0,79%	0,09%	0,29%	1,21
3505	-1,95%	-0,73%	0,08%	0,26%	1,18
5504,8	-1,93%	-0,71%	0,08%	0,25%	1,15
15504,8	-1,58%	-0,66%	0,08%	0,28%	1,00
21500	-1,12%	-0,59%	0,09%	0,30%	0,92

En effet, nous y voyons que, pour les faibles niveaux de puissance (autour de 15% de la puissance nominale), l'écart se situe entre 1,5% et 2% selon le réacteur. Alors que pour les autres cas, la différence entre le  $k_{eff}$  à un niveau donné et le cas nominal dépasse rare-

ment 1%. Cela illustre bien le fait qu'un réacteur nucléaire est capable d'opérer aisément à différentes puissances.<sup>15</sup>

Si nous concentrons notre étude sur les tout premiers MWj/t (Pour les 200 premiers MWj/t, avant le maximum d'importance du rôle du  $^{239}_{94}\text{Pu}$ ) nous obtenons la figure 3.8 (une figure similaire est obtenue avec le CANDU-6).

FIGURE 3.8 coefficient de multiplication effectif pour un ACR-700 sur les premiers MWj/t :



Ce qui nous conduit à une nouvelle constatation :

- Le burnup, abscisse du maximum local de  $k_{eff}$  dû au pic de plutonium varie en fonction du niveau de puissance. Il intervient d'autant plus tôt (sur une échelle de burnup) que le flux neutronique est faible.

En fait, ceci est simplement dû à la nature même de ce pic. Pour produire du plutonium 239, il faut produire du neptunium 239 puis lui laisser le temps de décroître. C'est donc la demie-vie de cet isotopes père<sup>16</sup> qui conditionne le moment où a lieu le pic du plutonium. Or, comme nous l'avons déjà expliqué précédemment, le taux de combustion

<sup>15</sup>C'est cette particularité qui a permis le développement rapide de cette technologie, lorsque les premiers essais de piles concernaient des modèles de seulement quelques MW.

<sup>16</sup>Demie vie du  $^{239}_{93}\text{Np}$  : environ 2 jours et 8 heures

couple les notions de temps et de puissance. Si le temps reste le même avant l'apparition du pic du plutonium, mais que la puissance est plus faible, le pic du plutonium se produira donc à un burnup inférieur et apparaîtra alors plus tôt sur nos courbes (toutes tracées en fonction du taux de combustion)<sup>17</sup>.

Si nous vous avons tracé les courbes représentant l'évolution de la différence de  $k_{eff}$  par rapport au cas nominal en fonction du burnup à la figure 3.7, c'est pour remarquer que cette différence varie de manière non linéaire avec le burnup. D'où l'idée, que certains isotopes influent sur le  $k_{eff}$ , mais de manière variable, au long du cycle du combustible, et que les acteurs et les rôles sont différents selon le niveau de puissance. Le  $k_{eff}$  est en fait une notion globale, elle nous permet d'étudier ce qui se déroule en coeur et conditionne le bilan de sortie.

Mais il nous faut maintenant entrer dans les détails pour arriver à notre calcul d'incertitude concernant la concentration isotopique finale des grappes. Dans la suite de ce chapitre, nous chercherons donc à valider cette hypothèse et à isoler les isotopes concernés.

### 3.3 Étude des isotopes sensibles aux variations de flux neutronique.

Comme nous l'avons vu au chapitre 1.1.2, certains isotopes ont une grande importance en terme de radioprotection et gestion des déchets (à cause notamment du relâchement d'énergie important sur une période elle aussi importante), nous les appellerons ici *isotopes sensibles*. La prévision exacte de leur concentration (ou au moins l'évaluation de l'erreur produite par l'approximation d'une évolution de grappe « au pire cas » au lieu d'« au plus juste cas ») est importante pour juger du risque plus ou moins important qu'ils font courrir lors de leur manipulation ou stockage à court, moyen et long terme.

En effet, une petite erreur de concentration en sortie de coeur pourrait être non négligeable dans un calcul d'évolution au bout de périodes critiques : 50, 300, 10000 ans.

---

<sup>17</sup>La réciproque est également vraie.

Ceci est sans parler des problèmes qu'elle entraînerait dans l'optique d'un retraitement ou d'une réutilisation des grappes sorties de cœur. En effet, il faudrait, pour ces deux opérations, connaître avec une certaine précision l'inventaire isotopique ou, du moins, la répartition statistique isotopique probable, pour pouvoir automatiser le processus de gestion des déchets.

Après nous être intéressé au niveau global du  $k_{eff}$ , et à sa variation, nous allons ici tenter d'étudier l'activité isotopique à 2 niveaux :

- au niveau d'une grappe dans une configuration donnée (CANDU-6, ACR-700, niveau de puissance...)
- sur l'ensemble des grappes sorties du coeur (pour chacun des deux types de réacteurs)

Dans cette section nous nous intéresserons d'abord à la première de ces deux questions ; la seconde sera résolue à la section 3.4.

### 3.3.1 Protocole de détermination des isotopes sensibles

Nous avons étudié, pour chacun des 80 isotopes cités au tableau 2.3, les concentrations à la sortie du coeur et la façon dont elles variaient selon les valeurs de flux données par le tableau 3.1. Ensuite, nous avons choisi ceux dont les variations de concentrations étaient non négligeables. Pour finalement arriver à un classement de ces isotopes en différentes catégories, puis permettre à la section 3.4, une estimation de l'activité globale des grappes en sortie de coeur.

### 3.3.2 Isotopes sensibles

Nous avons donc, en suivant la procédure ci-dessus, isolé 37 isotopes dit *sensibles* pour le CANDU-6 (dont 5 lui sont spécifiques) et 36 pour l'ACR-700 (dont 4 qui lui sont spécifiques). Les isotopes spécifiques à chaque réacteur sont notés en caractères gras

dans les tableaux 3.3 et 3.4, qui contiennent l'ensemble des isotopes sensibles. Concernant les 32 éléments communs aux 2 cas, nous retrouvons des isotopes très sensibles, tels que des actinides mineurs (les américium 241 et 242 par exemple, émetteurs  $\alpha$  et  $\beta^-$ , ou les neptunium 238 et 239, émetteurs  $\beta^-$ ) mais aussi des représentants de la famille des plutoniums ( $^{236}_{94}\text{Pu}$  et  $^{241}_{94}\text{Pu}$  pour les deux types de réacteurs,  $^{242}_{94}\text{Pu}$  pour l'ACR-700,  $^{238}_{94}\text{Pu}$  pour le CANDU-6). Les poisons neutroniques (le xénon 135 et l'iode 135) pour lesquels nous connaissons parfaitement les équations d'évolution et que nous savons directement reliées au flux, sont aussi concernés dans les deux cas.

Nous avons classé les différents isotopes par groupes de comportement face aux niveaux de puissances :

- Ceux dont la concentration varie avec la puissance de façon linéaire croissante.
- Ceux dont la concentration varie avec la puissance de façon logarithmique croissante.
- Ceux dont la concentration varie avec la puissance de façon linéaire décroissante.
- Ceux dont la concentration varie avec la puissance de façon exponentielle décroissante.
- Ceux ayant un comportement plus complexe

Tout ceci est rassemblé dans les tableaux 3.3 et 3.4.

TABLEAU 3.3 Isotopes sensibles dans un CANDU-6.

Augmentation linéaire	$^{141}\text{Ce}$ $^{238}\text{Np}$ $^{103}\text{Ru}$	$^{156}\text{Eu}$ $^{239}\text{Np}$ $^{133}\text{Xe}$	$^{157}\text{Gd}$ $^{149}\text{Pm}$	$^{135}\text{I}$ $^{151}\text{Pm}$	$^{147}\text{Nd}$ $^{143}\text{Pr}$	$^{148}\text{Nd}$ $^{105}\text{Rh}$
Diminution linéaire	$^{133}\text{Cs}$	$^{105}\text{Pd}$	$^{107}\text{Pd}$	$^{141}\text{Pr}$	$^{238}\text{Pu}$	$^{103}\text{Rh}$
Augmentation Logarithmique	$^{144}\text{Ce}$ $^{135}\text{Xe}$	$^{134}\text{Cs}$	$^{154}\text{Eu}$	$^{155}\text{Eu}$	$^{236}\text{Pu}$	$^{241}\text{Pu}$
Diminution exponentielle	$^{241}\text{Am}$	$^{242}\text{Am}$	$^{135}\text{Cs}$	$^{144}\text{Nd}$	$^{149}\text{Sm}$	
Cas spécifiques	$^{143}\text{Nd}$	$^{147}\text{Pm}$	$^{148}\text{Pm}$	$^{148\text{m}}\text{Pm}$	$^{149}\text{Sm}$	

TABLEAU 3.4 Isotopes sensibles dans un ACR-700.

Augmentation Linéaire	$^{141}\text{Ce}$	$^{156}\text{Eu}$	$^{157}\text{Gd}$	$^{135}\text{I}$	$^{147}\text{Nd}$	$^{238}\text{Np}$
	$^{239}\text{Np}$	$^{149}\text{Pm}$	$^{151}\text{Pm}$	$^{143}\text{Pr}$	$^{105}\text{Rh}$	$^{103}\text{Ru}$
	$^{133}\text{Xe}$					
Diminution linéaire	$^{105}\text{Pd}$	$^{141}\text{Pr}$	$^{103}\text{Rh}$			
Augmentation logarithmique	$^{144}\text{Ce}$	$^{134}\text{Cs}$	$^{154}\text{Eu}$	$^{155}\text{Eu}$	$^{236}\text{Pu}$	$^{241}\text{Pu}$
	$^{242}\text{Pu}$	$^{135}\text{Xe}$				
Diminution exponentielle	$^{241}\text{Am}$	$^{242}\text{Am}$	$^{135}\text{Cs}$	$^{144}\text{Nd}$	$^{147}\text{Sm}$	
Cas spécifique	$^{243}\text{Am}$	$^{147}\text{Pm}$	$^{148}\text{Pm}$	$^{148\text{m}}\text{Pm}$	$^{149}\text{Sm}$	$^{150}\text{Sm}$
	$^{151}\text{Sm}$					

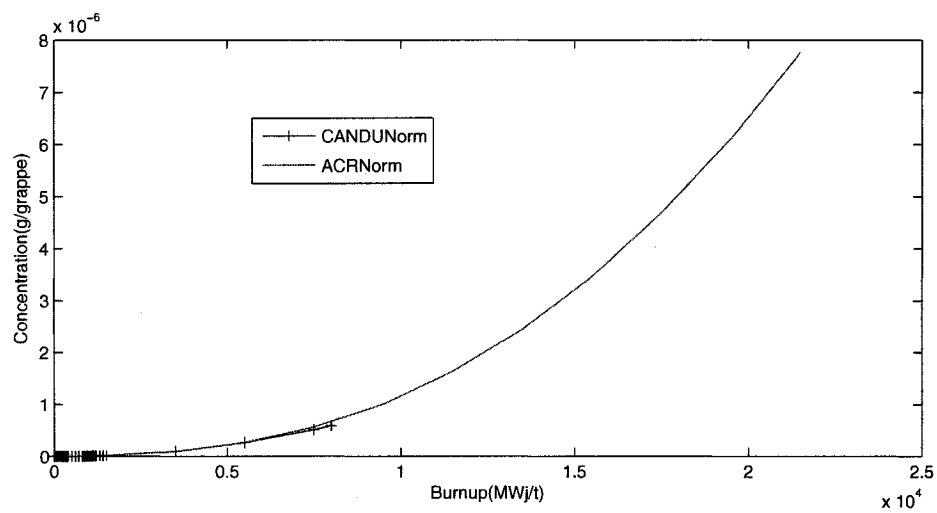
Nous remarquons que tout isotope ayant un comportement donné dans un réacteur conserve le même comportement dans l'autre réacteur. En effet, les équations de champs de noyaux dépendent de l'intensité du flux et non de la nature de celui-ci. Ce qui varie, ce sont donc les ordres de grandeur, car un élément précurseur peut être produit en plus grande quantité dans l'un des deux réacteurs. C'est d'ailleurs l'enchaînement de plusieurs éléments précurseurs, influencés différemment par le flux : un précurseur dont la concentration varie de façon linéaire et un autre pour lequel la concentration varie de façon exponentielle, qui peut aboutir au comportement complexe de la variation de l'isotope fils.

Par contre, les allures de la plupart des courbes issues de l'ACR-700 sont quasiment similaires à celles du CANDU-6 jusqu'au burnup de  $8000 \frac{\text{MWj}}{\text{t}}$ . Le prolongement de la combustion dans l'ACR-700 ne fait que prolonger l'évolution des isotopes stoppée par la sortie du cœur dans un CANDU-6. Nous avons illustré cela en traçant les courbes du plutonium 236 dans les deux cas sur un même graphique à la figure 3.9. L'utilisation de la notion de burnup est donc idéale pour visualiser les courbes.

Ainsi, nous nous intéressons dans la section suivante à quelques-uns de ces isotopes, choisis pour leurs capacités à représenter le comportement de leur groupe.



FIGURE 3.9 Évolution de la concentration en  $^{236}_{94}\text{Pu}$  dans un ACR-700 et dans un CANDU-6 :



### 3.3.3 Modèle mathématique de groupe

Nous allons illustrer mathématiquement ici, grâce au modèle des équations du champ des noyaux présenté au chapitre 1.2.2, l'évolution des concentrations dans le combustible en cœur.[Marleau, 2004a]

Dans cette section, nous utiliserons un raccourci linguistique par rapport à la section 3.3.2. Ainsi lorsque nous parlerons d'*évolution linéaire* pour nos groupes, nous sous-entendrons que la variation, c'est-à-dire la dérivée de la concentration, augmente linéairement avec le flux. Écrire « isotopes à variation linéaire » équivaudra donc à « isotope dont la concentration à un burnup donné varie de façon linéaire par rapport au flux (à la puissance) ».<sup>18</sup>

#### 3.3.3.1 Isotopes à variation linéaire

Ce groupe contient, entres autres, l'iode 135 ( $^{135}_{53}\text{I}$ ). Afin d'illustrer ce que nous appelons un isotope à variation linéaire, nous avons tout d'abord tracé, sur la figure 3.10, la concentration de l'iode 135 en fonction du burnup pour un CANDU-6. Nous remarquons sur ce graphique, que la concentration en sortie semble dépendre directement du niveau de flux auquel la grappe à été brulée.

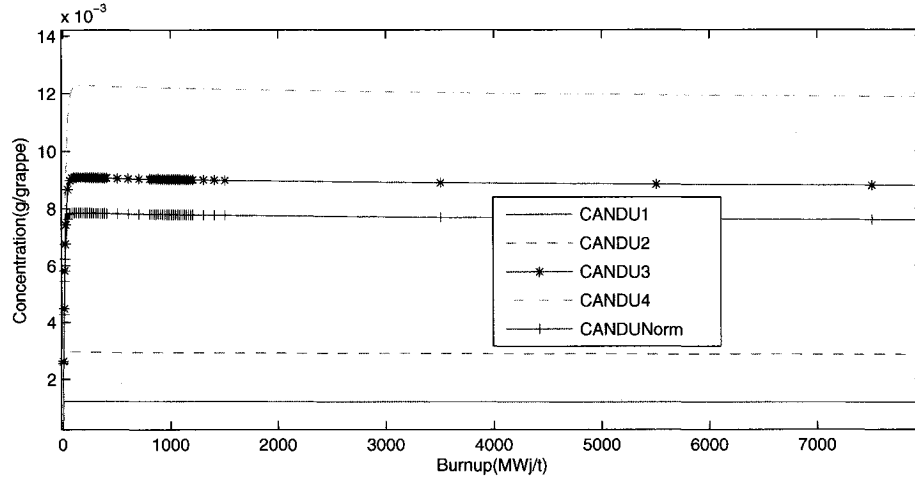
L'iode 135 possède une équation d'évolution bien connue :<sup>19</sup>

$$N_{53}^{135}\text{I}(t) = N_{53}^{135}\text{I}(t_0)e^{-\lambda_{53}^{135}\text{I}(t-t_0)} + \frac{Y_{53}^{135}\text{I}\Sigma_f\phi}{\lambda_{53}^{135}\text{I}}(1 - e^{-\lambda_{53}^{135}\text{I}(t-t_0)}) \quad (3.1)$$

<sup>18</sup>remarque valable pour toutes les appellations de groupes, tel que logarithmique, exponentielle...

<sup>19</sup>Forme temporelle obtenue en supposant que l'évolution se déroule à flux constant, que les sections efficaces microscopiques sont indépendantes du temps et que les concentrations des isotopes fissiles ne varient pas beaucoup sur l'intervalle de temps considéré.

FIGURE 3.10 Variation de la concentration en  $^{135}_{53}I$  dans un CANDU-6 selon le niveau de puissance :



Une réorganisation de l'équation pour mettre en valeur le rôle du flux ( $\phi$ ) nous donne :<sup>20</sup>

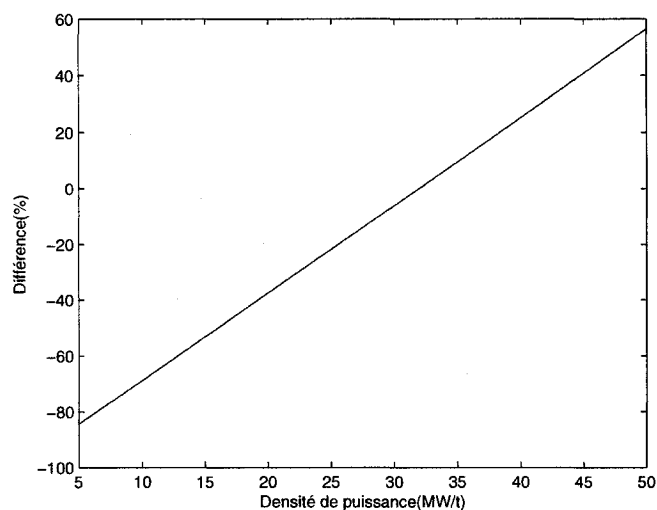
$$N_{53}^{135}I(t) = (N_{53}^{135}I(t_0) - \frac{Y_{53}^{135}I \Sigma_f \phi}{\lambda_{53}^{135}I}) e^{-\lambda_{53}^{135}I(t-t_0)} + \frac{Y_{53}^{135}I \Sigma_f \phi}{\lambda_{53}^{135}I} \quad (3.2)$$

Le premier terme correspond à la transitoire. Lorsque que l'on atteint le régime permanent ( $t \rightarrow \infty$ ), et quelque soit la valeur de concentration initiale ( $N_{53}^{135}I(t_0)$ , valant par exemple 0 pour une grappe neuve), le flux ( $\phi$ ) contrôle, tel un coefficient multiplicatif, la concentration isotopique (terme  $\frac{Y_{53}^{135}I \Sigma_f \phi}{\lambda_{53}^{135}I}$ ). Ainsi, plus cette valeur de flux est élevée, plus la concentration augmente rapidement.

La figure 3.11 illustre la variation autour du cas normal, de la concentration isotopique de  $^{135}_{53}I$  en sortie d'un CANDU-6. Nous y visualisons parfaitement la linéarité de la variation de concentration du flux. Il y a donc bien un lien direct, correspondant en un simple coefficient dans ce cas, entre niveau de flux et la concentration en sortie de coeur.

<sup>20</sup>Vous trouverez en page xx le descriptif complet des notations utilisées dans ce rapport, y compris les symboles mathématiques des présentes équations.

FIGURE 3.11 Variation de la concentration finale en  $^{135}_{53}\text{I}$  dans un CANDU-6 selon le niveau de puissance :



Nous avons sélectionné 4 isotopes dont la variation de concentration en fonction de la puissance est linéaire positive, mais dont le comportement en coeur répond à des schémas bien différents :

- L'iode 135, déjà explicité avec l'équation 3.2 et illustré par la figure 3.10. Nous avons ici l'illustration d'un isotope saturant avec le temps dans le réacteur. La valeur de saturation dépend directement du flux qui agit comme un facteur multiplicatif.
- L'euprium 156 dont nous avons tracé la courbe d'évolution pour un CANDU-6 à la figure 3.12. Son évolution, une fois la transitoire passée, est linéaire croissante. L'augmentation du flux augmente la pente de la courbe de façon linéaire par rapport à la puissance.
- Le praseodyme 141 a un comportement très proche de l'euprium 156 ainsi que l'illustre la figure 3.13.

FIGURE 3.12 Évolution de la concentration en  $^{156}_{63}\text{Eu}$  dans un CANDU-6 :

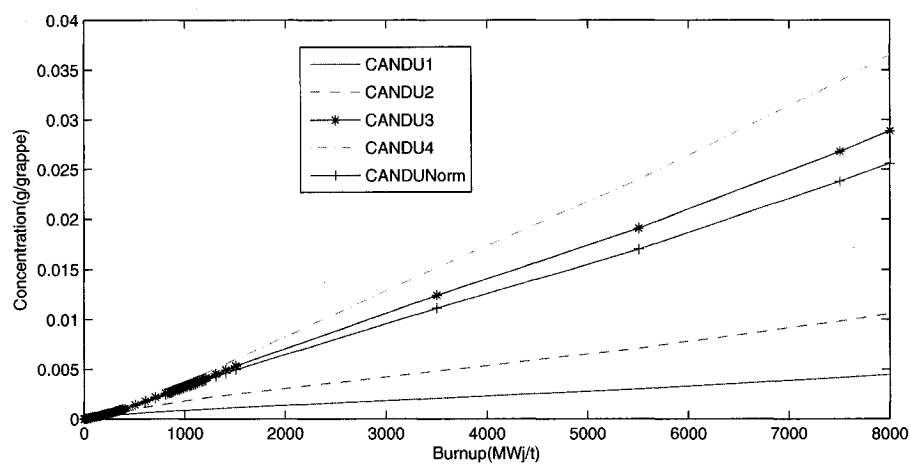


FIGURE 3.13 Évolution de la concentration en  $^{141}_{59}\text{Pr}$  dans un CANDU-6 :

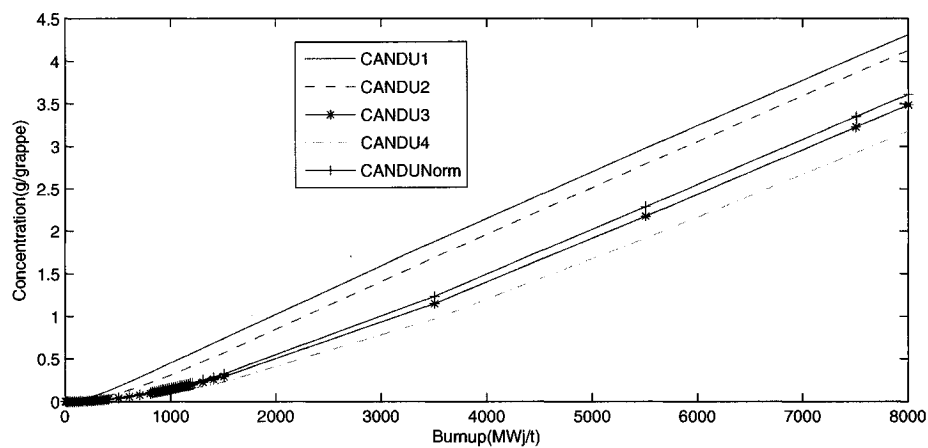
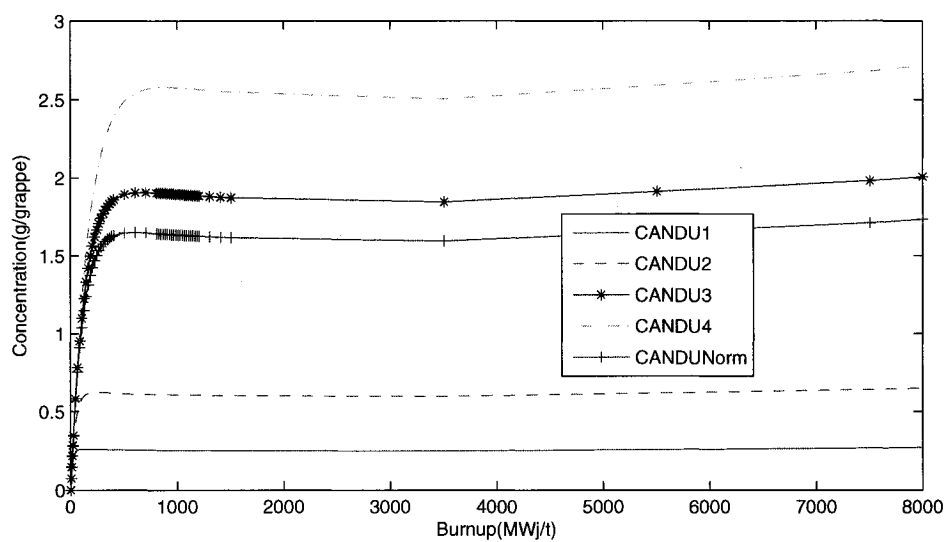


FIGURE 3.14 Évolution de la concentration en  $^{239}_{93}\text{Np}$  dans un CANDU-6 :



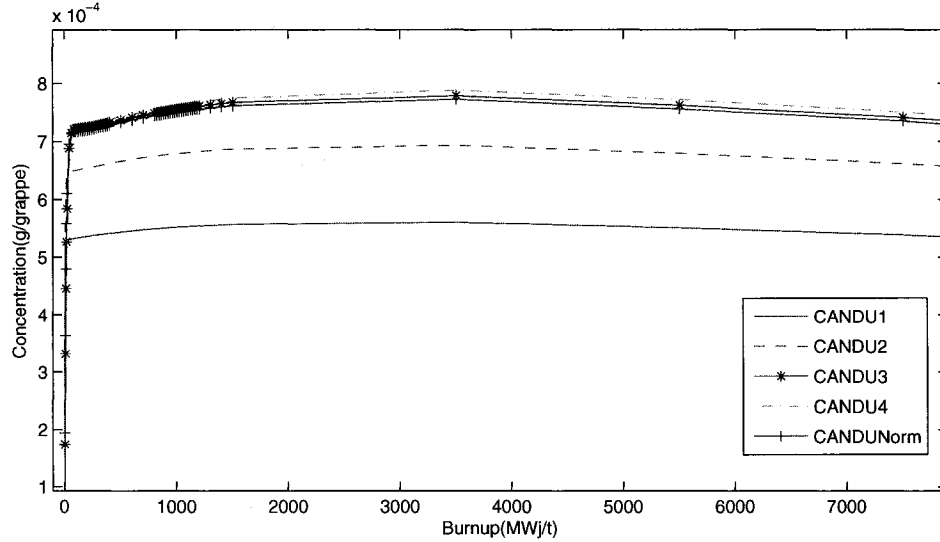
- Le neptunium 239, dont nous avons tracé l'évolution à la figure 3.14, illustre le cas d'un isotope évoluant d'abord vers un maximum local puis réaugmentant par une exponentielle douce. Encore une fois, l'augmentation de la puissance multiplie de façon linéaire la fonction exponentielle.

Si nous comparons maintenant la valeur finale en sortie de coeur pour un niveau de puissance donnée par rapport au cas normal, nous obtenons les tableaux récapitulatifs présentés à la section II (II.2 et II.3). L'intérêt de ces résultats tient essentiellement en une estimation chiffrée des variations de concentrations, estimation qui nous servira en section 3.4.

### 3.3.3.2 Isotopes à variation logarithmique ou exponentielle

Les isotopes que nous avons intitulés ainsi sont ceux pour lesquels les faibles niveaux de puissances ont un impact bien plus important sur la concentration isotopique que les hauts niveaux de flux. Ce comportement s'illustre au moyen de la figure 3.15, qui nous montre un fort décalage des courbes de concentration pour les grappes brûlées à faible puissance par rapport aux grappes ayant subi de hauts niveaux de flux dont les allures sont toutes localisées autour de la courbe de concentration du cas nominal.

Le contraire, à savoir : ceux pour lesquels les hauts niveaux de flux ont un impact bien plus important sur la concentration isotopique que les basses puissances, s'explique exactement de la même manière. Ces deux catégories n'en forment en fait qu'une, car les deux allures de courbes (logarithmique et exponentielle) sont, en fait, mathématiquement symétriques telle que le sont les droites affines croissantes ou décroissantes du paragraphe précédent. L'exemple typique de ce genre de comportement est celui du xénon 135. Son équation d'évolution découle de celle de l'iode 135 écrite précédemment et du

FIGURE 3.15 Évolution de la concentration en  $^{135}_{54}\text{Xe}$  dans un CANDU-6 :

xénon 133 :

$$N_{54}^{133}\text{Xe}(t) = N_{54}^{133}\text{Xe}(t_0)e^{-\sigma_{54}^{133}\text{Xe}\phi(t-t_0)} + \frac{Y_{54}^{133}\text{Xe}\Sigma_f\phi}{\lambda_{54}^{133}\text{Xe}}(1 - e^{-\lambda_{54}^{133}\text{Xe}(t-t_0)}) \quad (3.3)$$

$$\begin{aligned} N_{54}^{135}\text{Xe}(t) = & N_{54}^{135}\text{Xe}(t_0)e^{-(\lambda_{54}^{135}\text{Xe} + \sigma_{54}^{135}\text{Xe}\phi)(t-t_0)} \\ & + \frac{(Y_{53}^{135}\text{I} + Y_{54}^{135}\text{Xe} + Y_{54}^{133}\text{Xe})\Sigma_f\phi}{\lambda_{54}^{135}\text{Xe} + \sigma_{54}^{135}\text{Xe}\phi}(1 - e^{-(\lambda_{54}^{135}\text{Xe} + \sigma_{54}^{135}\text{Xe}\phi + \sigma_{54}^{133}\text{Xe}\phi)(t-t_0)}) \\ & + \frac{(Y_{53}^{135}\text{I} + Y_{54}^{133}\text{Xe})\Sigma_f\phi - \lambda_{53}^{135}\text{I}N_{53}^{135}\text{I}(t_0) - \lambda_{54}^{133}\text{Xe}N_{54}^{133}\text{Xe}(t_0)}{\lambda_{54}^{135}\text{Xe} + (\sigma_{54}^{135}\text{Xe} + \sigma_{54}^{133}\text{Xe}\phi) - \lambda_{53}^{135}\text{I} - \lambda_{54}^{133}\text{Xe}} \\ & (e^{-(\lambda_{54}^{135}\text{Xe} + \sigma_{54}^{135}\text{Xe}\phi)(t-t_0)} - e^{-\lambda_{53}^{135}\text{I}(t-t_0)} - e^{-\lambda_{54}^{133}\text{Xe}(t-t_0)}) \end{aligned} \quad (3.4)$$

L'équation précédente (3.4) se simplifie lorsque nous faisons tendre  $t$  vers l'infini (une fois la transitoire passée), tel que pour la plupart des isotopes en sortie de coeur. Nous



obtenons alors :

$$N_{54}^{135}Xe(t) = \frac{(Y_f^{135}I + Y_f^{135}Xe + Y_f^{133}Xe)\Sigma_f\phi}{\lambda_{54}^{135}Xe + \sigma_a^{135}Xe\phi} \quad (3.5)$$

En fait, cette équation est de la forme :

$$\frac{A\phi}{B + C\phi} \quad (3.6)$$

Voici pourquoi nous avons classé dans la même catégorie les évolutions logarithmiques et exponentielles : dépendamment de l'importance des coefficients A, B et C, le numérateur a plus ou moins d'importance. Lorsque l'on évalue la dérivée de cette équation pour comprendre le comportement de la variation en fonction de  $\phi$ , nous obtenons un comportement en  $1/x^2$  (qualifié ici, par abus de langage d'exponentiel) ou en  $\frac{1}{x}$  (qualifié quant à lui de logarithmique). Mais qu'appelle-t-on un comportement logarithmique ou exponentiel ? Les figures 3.16 et 3.17 illustrent bien ce propos (logarithmique pour le  $^{135}Xe$ , exponentiel pour le  $^{241}Am$ ).

FIGURE 3.16 Variation de la concentration finale en  $^{135}_{54}Xe$  dans un CANDU-6 selon le niveau de puissance :

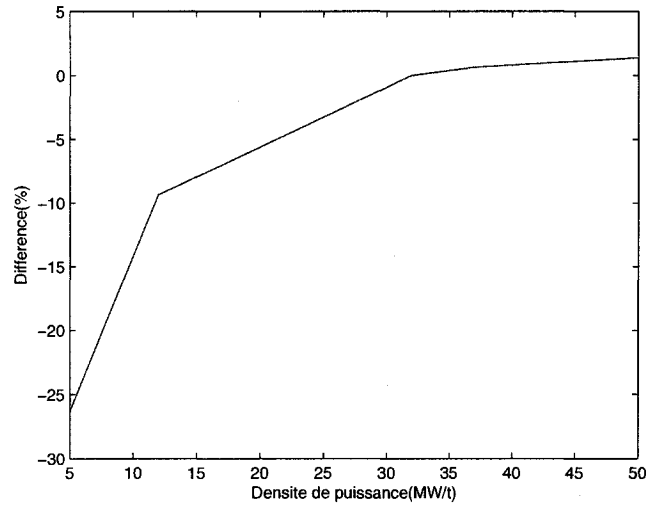
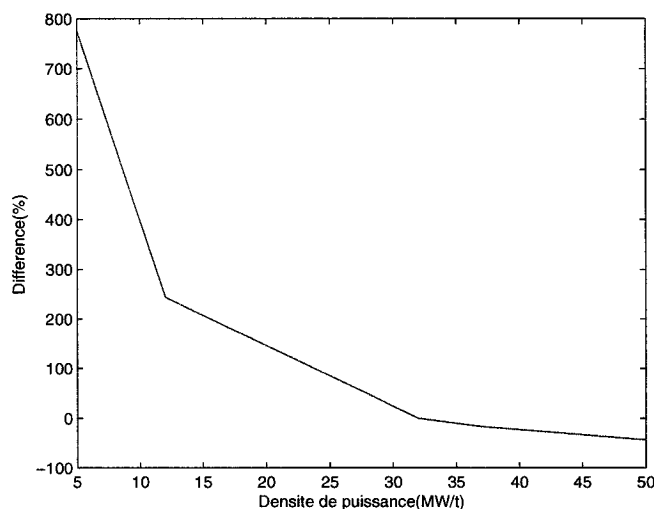


FIGURE 3.17 Variation de la concentration finale en  $^{241}_{95}\text{Am}$  dans un CANDU-6 selon le niveau de puissance :



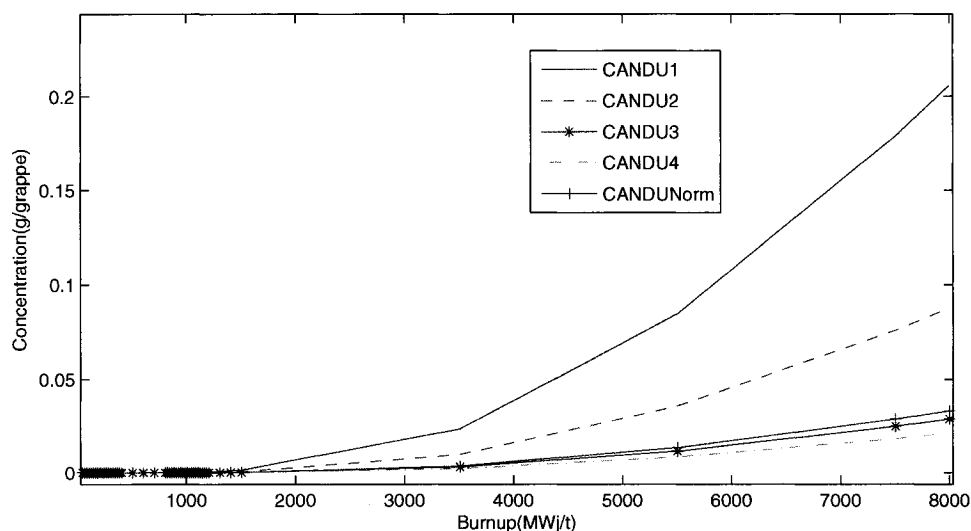
L'étude du xénon 135 illustre bien les différents rôles qu'a la valeur de flux sur sa concentration. Ici, ce coefficient intervient à trois niveaux. Il provient à la fois de la désintégration radioactive de l'iode 135 dont le cas a été étudié précédemment, mais aussi directement de la fission de l'uranium 235 (pour environ 1% des produits de fission) intrinséquement liée au flux neutronique, et enfin de l'absorption neutronique élevée du xénon 133 ( $3,11 \text{ Mb}^{21}$ ) lui-même produit de fission. Nous avons choisi de joindre en annexe les détails de l'étude concernant 3 isotopes particuliers. A savoir :

- Le xénon 135, isotope à saturation, dont le cas est connu et étudié et qui va nous servir à illustrer mathématiquement notre propos. Sur la figure 3.15 nous remarquons clairement que l'impact des petites puissances sur les concentrations est très important (courbe très éloignée des autres) contrairement aux fortes puissances toutes regroupées à un niveau donné.
- Le plutonium 236.

<sup>21</sup>1Mb (ou Mega Barn) =  $10^6 \text{ b}$  soit  $10^{-18} \text{ cm}^2$

- L'américium 241 (voir figure 3.18).

FIGURE 3.18 Évolution de la concentration en  $^{241}_{95}\text{Am}$  dans un CANDU-6 :



Les deux derniers isotopes ont été sélectionnés pour leurs rôles importants en terme de gestion des déchets et de sécurité liée à la manipulation des grappes en sortie de cœur (Ce sont tous les deux des émetteurs  $\alpha$ ). Le cas de américium 241 est d'autant plus intéressant que cet isotope voit sa concentration dépendre très fortement du niveau de puissance, bien au-delà des autres isotopes. En effet, une grappe brûlée à petite puissance dans un ACR-700 contient une quantité d'américium en sortie de cœur jusqu'à 10 fois supérieures à celle d'une autre brûlée à pleine puissance (soit presque un gramme d'américium 241 par grappe).

### 3.3.3.3 Isotopes à comportement complexe

Lorsqu'un isotope est soumis à un flux neutronique, nous pouvons définir le concept de demie-vie équivalente. En effet, la désintégration n'est plus la seule voie de disparition de l'isotope qui peut aussi disparaître par fission, absorption... Par exemple un isotope

tel que l'xénon 135 ayant une demie-vie effective de 9,14 h voit-il cette valeur réduite à 1,28 h sous un flux "normal" de  $10^{14} \frac{\text{Neutrons}}{\text{cm}^2 \cdot \text{s}}$  dans un CANDU-6.[Marleau, 2004a]

Cette variation est directement dépendante du flux. Elle peut ralentir ou accélérer l'approche d'un niveau de saturation isotopique. Si l'on considère différentes grappes de burnup égales, mais ayant subi différents niveaux de puissances ; outre la valeur, l'avancé dans le schéma de variation isotopique ne sera pas forcément la même.

Ainsi certains isotopes peuvent-ils se retrouver qualifiés de "complexes" car à un burnup de sortie donné, pour les hauts niveaux de puissances, ils réussissent à atteindre leur saturation (graphiquement, on parle d'une asymptote horizontale, donc d'une dérivée nulle) alors qu'il sont encore en déséquilibre pour les faibles puissances (dérivée non nulle)<sup>22</sup>. Dans ce cas, aucune corrélation ne peut être trouvée entre puissance et concentration isotopique finale. Le problème vient du fait que notre classification se base sur les concentrations en sortie de coeur, c'est à dire pour un burnup donné.

Le cas du samarium 149 est intéressant pour illustrer ce propos. Comme nous le voyons à la figure 3.19, il pourrait pratiquement être qualifié de linéaire dans un réacteur CANDU-6 si son évolution sous faible flux ne divergeait pas vers  $7000 \frac{\text{MWj}}{t}$  (figure 3.20). Cette divergence est confirmée par le suivi isotopique dans l'ACR-700 (figure 3.21).

Nous obtenons alors une courbe de variations de concentrations en sortie du coeur en fonction de la puissance (figure 3.22) qui n'est ni une droite, ni interpôlable par un logarithme, polynôme ou une exponentielle. S'il a été classé dans les deux cas comme complexe, c'est parce que cet isotope est en phase transitoire au moment de le sortir du coeur dans les deux cas : les courbes de concentration s'intersectent, laissant celles des faibles flux d'abord provoquer les plus fortes concentrations (à faible burnup) puis passer en dessous de toutes les autres lorsque le taux de combustion augmente. Ainsi, nous ne pouvons le qualifier réellement de linéaire dans le cas du CANDU-6 car nous n'avons pas

<sup>22</sup>Cette remarque est aussi valable pour les isotopes ayant une longue phase transitoire avant que s'équilibrent destructions et créations isotopiques.

FIGURE 3.20 Concentration en  $^{149}_{62}\text{Sm}$  dans un CANDU-6 selon le niveau de puissance.

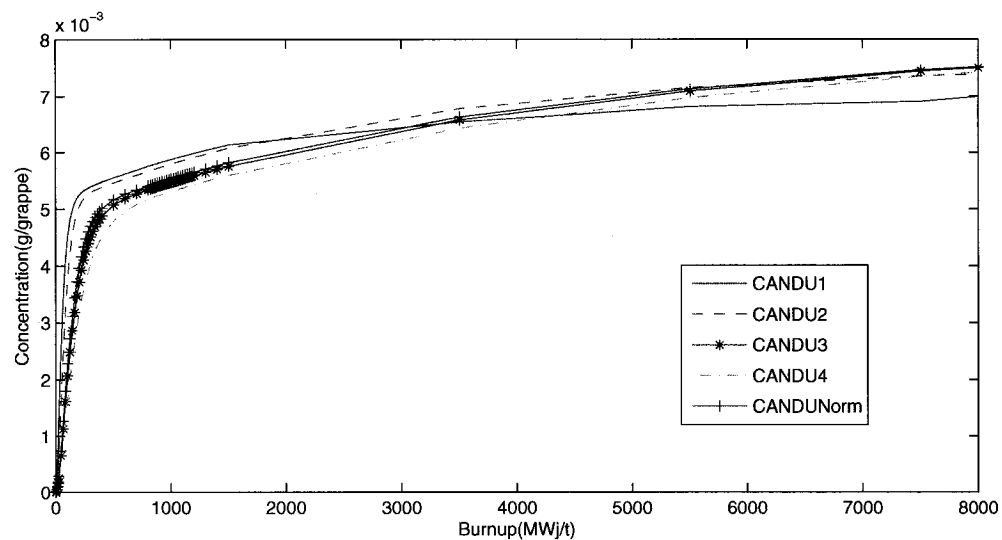


FIGURE 3.21 Variation de la concentration finale en  $^{149}_{62}\text{Sm}$  dans un ACR-700 selon le niveau de puissance.

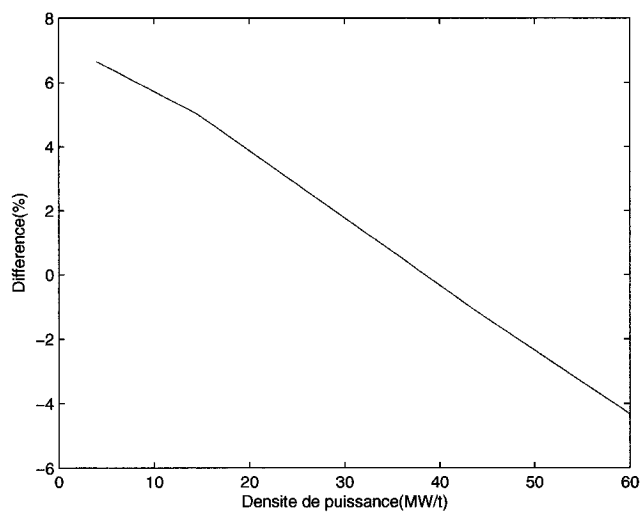
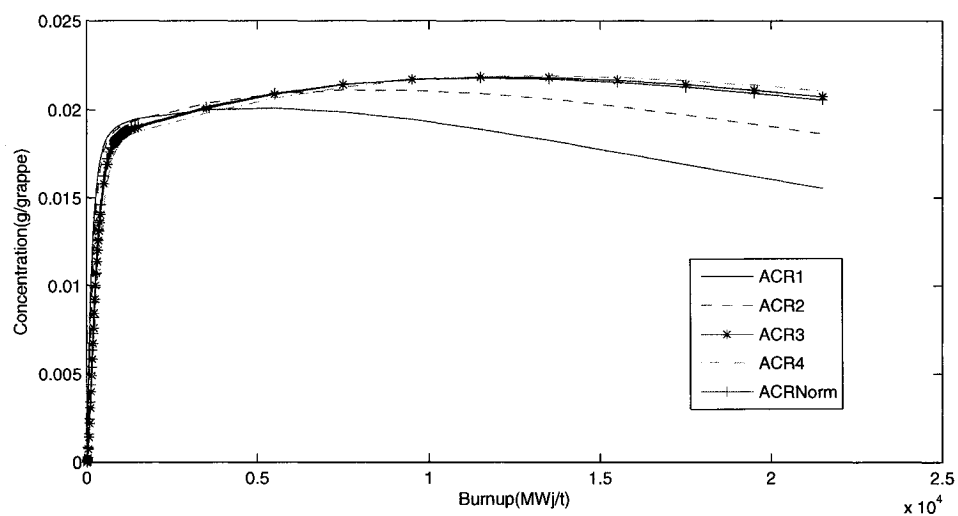
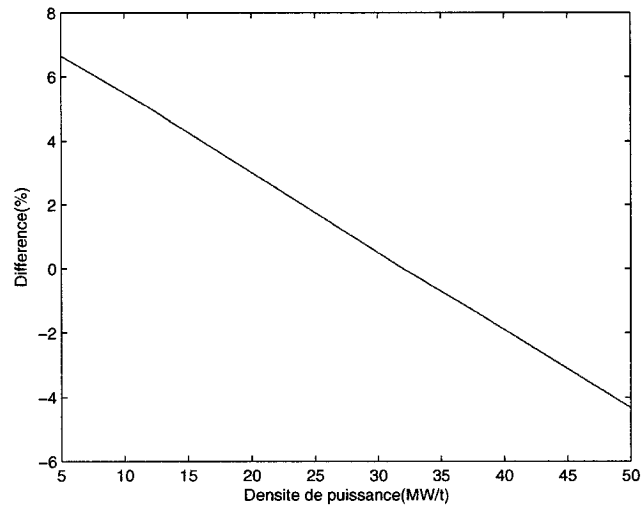


FIGURE 3.22 Concentration en  $^{149}_{62}\text{Sm}$  dans un ACR-700 selon le niveau de puissance.



assez de points pour confirmer cet état et qu'il faudrait réaliser une étude plus fine pour comprendre cette transitoire.

FIGURE 3.19 Variation de la concentration finale en  $^{149}_{62}\text{Sm}$  dans un CANDU-6 selon le niveau de puissance.



### 3.3.4 Résultats chiffrés

Nous avons rassemblé en annexe II les tableaux récapitulatifs (tableau II.2 et tableau II.3) des concentrations en gramme par grappe ( $\frac{g}{grappe}$ ) et des variations en pourcentage par rapport au cas normal, pris en référence (4<sup>ème</sup> colonne de ces tableaux). Comme expliqué précédemment, l'ensemble de ces valeurs servira à notre étude statistique présentée par la suite.

### 3.3.5 Influence des historiques de puissance en cœur sur le comportement des grappes hors cœur

Toujours dans le but de comprendre l'impact du niveau de flux sur l'inventaire isotopique, nous avons fait évoluer nos grappes issues des 2 types de réacteur sur une période comprise entre la sortie de cœur et 100000 ans. Nous avons, pour cela, calculé l'activité des grappes de puissance 2 et 3<sup>23</sup> au cours du temps, puis tracé et présenté les résultats aux sous-sections 3.3.5.1 et 3.3.5.2.

Si nous avons choisi de suivre les grappes 2 et 3, comme expliqué dans le chapitre 3.1.3, c'est parce qu'elles représentent les niveaux de puissances limites d'un cœur fonctionnant à la puissance nominale de façon normale (sans transitoire ou saut de puissance). Ainsi les courbes d'activités à d'autres niveaux de puissance devraient-elles se tracer entre elles sur les figures et nos différents cas d'étude bornent graphiquement la zone d'incertitude. L'étude complète de l'énergie de décroissance d'un combustible usé ne sera abordée que dans le chapitre 5. Ce qui nous importe ici c'est d'isoler les différents acteurs de l'activité hors cœur, pour pouvoir, dans l'étude statistique du cœur, isoler les isotopes qu'il faudra réellement suivre pour affiner l'étude de l'inventaire isotopique et faire le lien entre puissance en cœur et activité résiduelle.

#### 3.3.5.1 Le cas des grappes issues du CANDU-6.

La figure 3.23 présente les résultats sur les 300 premières années à la sortie du cœur. Nous y remarquons d'emblée que les d'activités sont très comparables au-delà de 50 ans.

Si nous nous intéressons aux premières valeurs et calculons les différences d'activité en pourcentage par rapport au cas normal (de  $31,97 \frac{MW}{t}$ ) nous obtenons le tableau 3.5.

---

<sup>23</sup>Voir le tableau 3.1 à la section 3.1.3 pour de plus amples détails. La puissance 2 correspond ainsi à  $14,5 \frac{MW}{t}$  et la puissance 3 à  $44,0 \frac{MW}{t}$  pour l'ACR-700.



FIGURE 3.23 Variation d'activité pour une grappe sortie d'un CANDU-6 selon le niveau de puissance sous lequel elle fut brûlée :

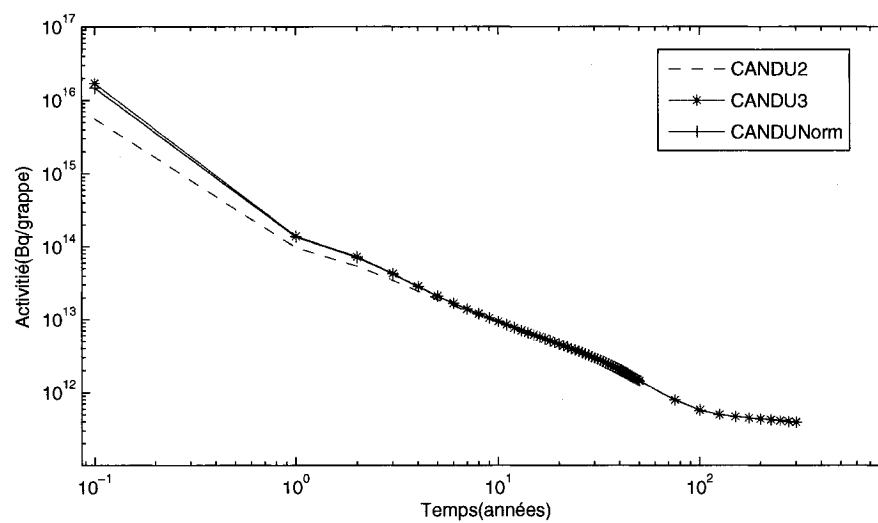


TABLEAU 3.5 Différence d'activité entre les grappes irradiées à la puissance 2 (  $12, 0 \frac{MW}{t}$  ) et 3 (  $37, 0 \frac{MW}{t}$  ) dans un CANDU-6 et le cas normal pris en référence

Temps (années)	Différence(%)		Temps (années)	Différence(%)		Temps (années)	Différence(%)	
	CANDU2	CANDU3		CANDU2	CANDU3		CANDU2	CANDU3
0,1	-61,4609%	15,2344%	17	-1,9016%	0,1823%	34	-1,1417%	0,1400%
1	-27,6698%	3,0997%	18	-1,7703%	0,1756%	35	-1,1341%	0,1363%
2	-22,9224%	2,4399%	19	-1,6616%	0,1695%	36	-1,1184%	0,1387%
3	-17,9343%	1,8254%	20	-1,5714%	0,1654%	37	-1,1092%	0,1375%
4	-13,4050%	1,2812%	21	-1,4993%	0,1595%	38	-1,0984%	0,1364%
5	-9,9762%	0,8860%	22	-1,4359%	0,1557%	39	-1,0871%	0,1390%
6	-7,6637%	0,6341%	23	-1,3857%	0,1533%	40	-1,0785%	0,1383%
7	-6,1593%	0,4839%	24	-1,3444%	0,1503%	41	-1,0684%	0,1362%
8	-5,1509%	0,3945%	25	-1,3094%	0,1492%	42	-1,0582%	0,1359%
9	-4,4288%	0,3388%	26	-1,2807%	0,1449%	43	-1,0475%	0,1354%
10	-3,8746%	0,3006%	27	-1,2539%	0,1457%	44	-1,0375%	0,1348%
11	-3,4253%	0,2730%	28	-1,2319%	0,1433%	45	-1,0271%	0,1347%
12	-3,0529%	0,2501%	29	-1,2128%	0,1441%	46	-1,0164%	0,1338%
13	-2,7386%	0,2303%	30	-1,1927%	0,1446%	47	-1,0060%	0,1339%
14	-2,4705%	0,2155%	31	-1,1816%	0,1409%	48	-0,9945%	0,1329%
15	-2,2465%	0,2022%	32	-1,1674%	0,1391%	49	-0,9839%	0,1324%
16	-2,0584%	0,1911%	33	-1,1565%	0,1412%	50	-0,9735%	0,1322%

Ce tableau nous présente l'évolution chiffrée de la différence d'activité dans le temps, il nous montre l'importance des différences. Nous remarquons ainsi que l'activité peut être jusqu'à 60% plus faible pour les grappes brûlées à faible puissance au moment de la sortie du coeur, mais également de 15% plus élevée pour les grappes dites *chaude*. C'est ce dernier chiffre qui est significatif, il imposera la limite supérieure réelle<sup>24</sup> en terme de radioprotection. Le tableau illustre bien la diminution rapide de la différence d'activité, qui est inférieur à 0,7% au moment de la seconde manipulation des grappes, soit après 6 ans. Elle est, certes, encore de presque 7% pour les grappes brûlées à faible puissance, mais il s'agit d'une différence négative, donc peut intéressante en terme de radioprotection. Elle permettra néanmoins d'avoir une idée des bornes entre lesquelles peuvent se situer nos résultats si une incertitude sur les conditions expérimentales de mesure demeure, et que notre modèle donne des valeurs très différentes desdites mesures.

### 3.3.5.2 Le cas des grappes issues de l'ACR-700

Comme précédemment, l'impact du niveau de puissance par rapport au cas normal ( $38, 42 \frac{MW}{t}$ ) est très important lors des 50 premières années puis s'efface au-delà. Ainsi, nous obtenons le tableau 3.6 dont les valeurs de différences observées sont très proche de celle du même tableau présenté pour le CANDU-6. Ceci est évidemment dû à la similitude entre les listes d'isotopes influencés par le niveau de puissance que nous avons établi à la section 3.3.2. L'ordre de grandeur des différence quand à lui, relativement important durant les 50 premières années, est vraisemblablement contrôlé par la présence d'isotopes fortement influencés par la variation de puissance et ayant des demi-vies relativement courtes. La plupart du temps, si un isotope a une demie-vie réduite c'est qu'il est particulièrement actif. D'où la nécessité d'étudier ces variations car elles vont influencer l'activité des grappes sortie du coeur et donc aussi la puissance résiduelle.

---

<sup>24</sup> Avant un quelconque facteur de sécurité.

TABLEAU 3.6 Différence d'activité entre les grappes irradiées à la puissance 2 ( $14, 50 \frac{MW}{t}$ ) et 3 ( $44, 0 \frac{MW}{t}$ ) dans un ACR-700 et le cas normal pris en référence

Temps (années)	Différence(%)		Temps (années)	Différence(%)		Temps (années)	Différence(%)	
	ACR2	ACR3		ACR2	ACR3		ACR2	ACR3
0,1	-61,1206%	13,9793%	17	-3,3560%	0,2881%	34	-1,8876%	0,1590%
1	-40,1641%	5,4423%	18	-3,1037%	0,2658%	35	-1,8651%	0,1565%
2	-33,8221%	4,3979%	19	-2,8949%	0,2471%	36	-1,8413%	0,1542%
3	-27,0905%	3,3427%	20	-2,7237%	0,2314%	37	-1,8183%	0,1528%
4	-21,1228%	2,4341%	21	-2,5819%	0,2191%	38	-1,7967%	0,1510%
5	-16,5787%	1,7744%	22	-2,4656%	0,2084%	39	-1,7744%	0,1495%
6	-13,3816%	1,3404%	23	-2,3679%	0,1991%	40	-1,7513%	0,1484%
7	-11,1470%	1,0601%	24	-2,2874%	0,1922%	41	-1,7298%	0,1449%
8	-9,5099%	0,8747%	25	-2,2187%	0,1873%	42	-1,7091%	0,1442%
9	-8,2413%	0,7425%	26	-2,1608%	0,1816%	43	-1,6846%	0,1420%
10	-7,2094%	0,6410%	27	-2,1124%	0,1778%	44	-1,6617%	0,1424%
11	-6,3459%	0,5603%	28	-2,0697%	0,1734%	45	-1,6401%	0,1388%
12	-5,6146%	0,4921%	29	-2,0319%	0,1703%	46	-1,6170%	0,1348%
13	-4,9946%	0,4357%	30	-1,9981%	0,1665%	47	-1,5939%	0,1351%
14	-4,4700%	0,3884%	31	-1,9670%	0,1651%	48	-1,5707%	0,1337%
15	-4,0297%	0,3487%	32	-1,9397%	0,1631%	49	-1,5468%	0,1327%
16	-3,6615%	0,3161%	33	-1,9134%	0,1598%	50	-1,5228%	0,1272%

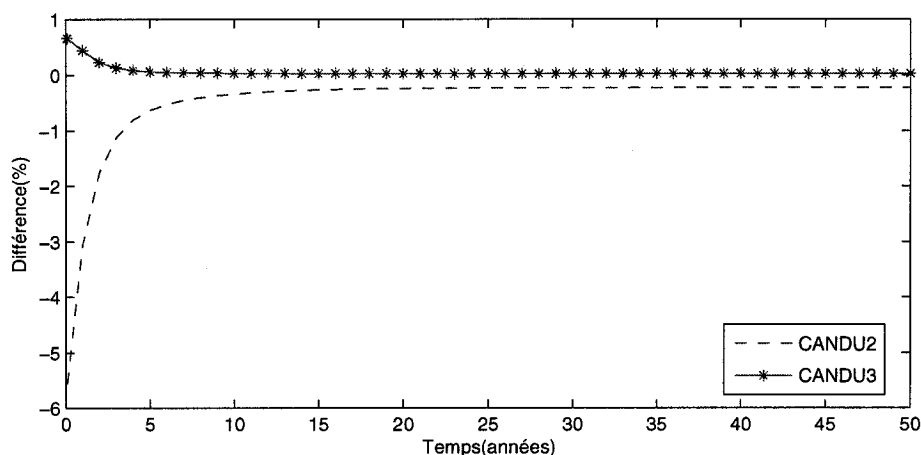
### 3.3.5.3 Contribution isotopique

Que ce soit pour le CANDU-6 ou l'ACR-700, nous observons une grande différence lors des 50 premières années. Cela est donc dû à la présence d'un ou plusieurs isotopes dont la variation de concentration selon le flux est forte et dont la demie vie est de l'ordre de 15 - 20 ans ou moins. En effet, on estime que la presque totalité des représentants (90%) d'un isotope donné ont disparu après une durée de 3 fois la demie vie, si l'influence sur l'activité hors cœur de la grappe n'est plus visible au delà de 50 ans, c'est qu'elle est gouverné par des isotopes qui ont alors totalement disparus, donc dont la demie vie est inférieur à 15 ans. Nous avons réussi à identifier les isotopes du tableau 3.7 comme grandement contributeurs :

TABLEAU 3.7 Isotopes responsables de la grande partie de l'activité des grappes en sortie de coeur et sur les cinquante (50) années suivantes.

$^{144}_{58}\text{Ce}$	$^{134}_{55}\text{Cs}$	$^{154}_{63}\text{Eu}$	$^{147}_{61}\text{Pm}$	$^{241}_{94}\text{Pu}$
------------------------	------------------------	------------------------	------------------------	------------------------

FIGURE 3.24 Contribution des 5 isotopes sélectionnés selon le niveau de puissance en sortie de CANDU-6 :



Lorsque l'on évalue la différence en termes d'activité, que ce groupe de 5 isotopes génère, nous obtenons la figure 3.24. Bien que la différence d'activité générée par ses isotopes soit, à priori, bien inférieure aux valeurs allant jusqu'à 60% observées aux tableaux 3.5 et 3.6, nous avons estimé que le  $^{144}_{58}\text{Ce}$ , pour son rôle les dix premières années, et le  $^{147}_{61}\text{Pm}$  pour son rôle entre 10 et 50 ans, tous deux radioactifs  $\beta^-$ , génèrent environ 80% de la différence d'activité. En fait, ce n'est pas *immédiatement* après la sortie du cœur que ces isotopes ont un rôle à jouer, mais dans les années qui suivent. Nous n'avons pas présenté sur cette figure les effets au delà de 50 ans car ils sont négligeables.

### 3.4 Étude sur le cœur global

Nous avons ensuite évalué l'impact des différences précisées au chapitre précédent sur l'ensemble des grappes sorties d'un réacteur. La répartition statistique de puissance canal à l'équilibre du rechargement<sup>25</sup> peut s'obtenir par simulation relativement aisément.

Nous avons donc récolté ces données pour les traiter en lot et effectuer une étude statistique de la variation de l'inventaire isotopique dans l'ensemble des grappes issues d'un réacteur nucléaire de type ACR-700.[Varin, 2006] Dans notre étude, nous considérons un stock de grappes en sortie du cœur. Ici le but est de comprendre l'importance des différences d'évaluation de l'activité d'un combustible irradié, selon le niveau de puissance en cœur, suivant deux scénarios :

- En considérant des résultats moyennés issus des valeurs de concentrations d'un groupe de grappes représentatif.
- En utilisant une seule grappe prise comme cas de référence, en puissance et conditions nominales.

Nous parlerons de *cas statistique* lorsque nous utiliserons les résultats issus de la pondération statistique présentée ci-dessous, et de *cas nominal* lorsque nous considérons les

---

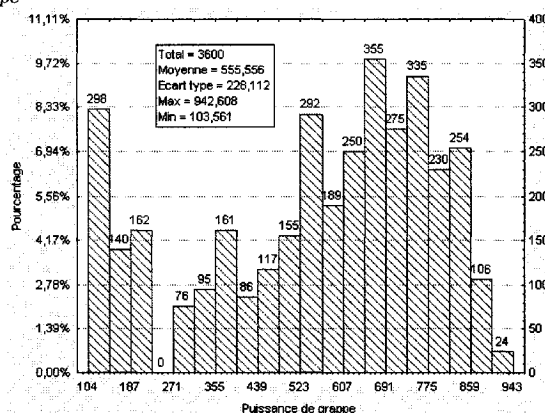
<sup>25</sup>En gestion du combustible de réacteur à chargement en marche, on parle d'un cœur à l'équilibre du rechargement lorsque la transitoire dû au premier démarrage du cœur (équivalente au remplacement d'un seul coup, de toutes les grappes du cœur) est passée.

concentrations d'une grappe irradiée à puissance nominale.

### 3.4.1 Répartition statistique de puissance

Dans un premier temps, nous avons tracé la répartition de puissance des grappes en kilo-watts à la figure 3.25. Le choix du kilo-watt fut ici nécessaire en raison de la grande disparité de situation qui aurait nécessitées des chiffres à virgule, moins faciles à manipuler, si nous avons utilisé la puissance massique. Nous avons pu remarquer que la

FIGURE 3.25 Répartition de la puissance des grappes d'un ACR-700 (par groupe de variations de  $40 \frac{kW}{grappe}$  autour d'une moyenne) :

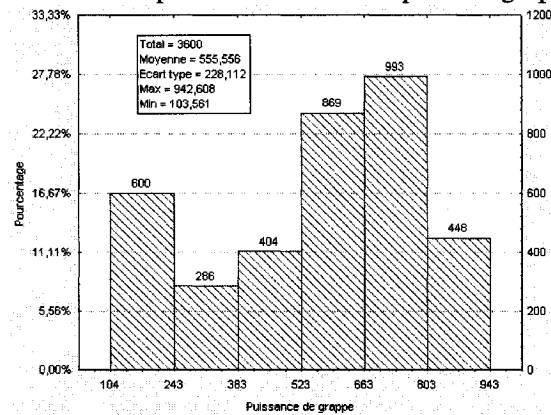


puissance moyenne de grappe est inférieure à la valeur nominale. Elle approche en effet  $555 kW$  ( $27,34 \frac{MW}{t}$ ) au lieu des  $780 kW$  ( $38,42 \frac{MW}{t}$ ) attendus dans le cas d'un ACR-700. Cela dénote bien la grande diversité de puissance dans un coeur de réacteur.

Nous avons cherché à grouper ces grappes en différentes catégories de puissances afin de pouvoir chiffrer notre incertitude et les variations autour du cas nominal. La solution avec 5 groupes nous paraît être une bonne répartition. Cela permet de modéliser le nombre important de grappes aux basses puissances avec 2 catégories, d'en avoir 2 autres pour les grappes de moyennes puissances (qui constitue le gros des grappes du

réacteur) et de modéliser les hautes valeurs avec une (1) dernière catégorie. Par rapport à la figure 3.26, nous avons regroupé les catégories entre  $363\text{ kW}$  et  $663\text{ kW}$  en effectuant une moyenne pondérée pour obtenir finalement la valeur indiquée dans le tableau 3.8. Nous avons considéré, dans chaque catégorie, toutes les grappes comme étant à la même

FIGURE 3.26 Répartition de la puissance modélisée pour les grappes d'un ACR-700 :



puissance (leur puissance moyenne) et effectué un calcul d'évolution isotopique pour les 5 niveaux de puissance.

TABLEAU 3.8 Catégorie de puissance dans un coeur d'ACR-700.

	Borne inférieure (kW)	Borne supérieure (kW)	Moyenne (kW)	Moyenne ( $\frac{MW}{t}$ )	Nombre de grappes
flux faible 1	104	243	173,50	9,02	600
flux faible 2	243	383	280,00	14,56	286
flux moyen 1	383	663	549,00	28,54	1273
flux moyen 2	663	803	750,00	38,99	993
flux élevé	803	943	847,00	44,03	448
		<b>totaux</b>	<b>557,57</b>	<b>28,98</b>	<b>3600</b>



### 3.4.2 Résultats

Nous avons ensuite traité le coeur au complet et comparé les résultats de concentrations de chaque isotope avec les concentrations obtenues en considérant un cas nominal. Les résultats sont consignés dans le tableau 3.9, ils sont indiqués en  $\frac{\text{atomes}}{\text{cm}^3}$  et ont été obtenus en pondérant chaque concentration du nombre de grappes équivalentes à la puissance de calcul puis moyennés pour constituer une grappe représentative.

TABLEAU 3.9: Comparaison par isotope de la différence de concentration pour un ACR-700 entre le cas statistique et le cas nominal.

Nom	Concentrations $\frac{\text{atomes}}{\text{cm}^3}$ cas statistique	différence par rapport au cas nominal	Nom	Concentrations $\frac{\text{atomes}}{\text{cm}^3}$ cas statistique	différence par rapport au cas nominal
$^{109}_{47}\text{Ag}$	1,92E+18	-0,0591%	$^{105}_{46}\text{Pd}$	1,10E+19	2,7916%
$^{241}_{95}\text{Am}$	4,72E+17	129,2281%	$^{107}_{46}\text{Pd}$	5,45E+18	-0,0363%
$^{242}_{95}\text{Am}$	4,76E+15	128,3892%	$^{108}_{46}\text{Pd}$	3,59E+18	-0,0390%
$^{243}_{95}\text{Am}$	5,47E+17	-1,0051%	PFP	3,47E+15	-0,2792%
$^{113}_{48}\text{Cd}$	2,20E+15	-0,3875%	PFP2	8,08E+19	0,0032%
$^{141}_{58}\text{Ce}$	1,58E+18	-30,4268%	$^{147}_{61}\text{Pm}$	5,07E+18	-12,9174%
$^{142}_{58}\text{Ce}$	2,78E+19	-0,1511%	$^{148}_{61}\text{Pm}$	2,32E+16	-31,3815%
$^{144}_{58}\text{Ce}$	9,63E+18	-26,1676%	$^{148}_{61}\text{Pm M}$	3,04E+16	-13,3829%
$^{133}_{55}\text{Cs}$	3,06E+19	0,5954%	$^{149}_{61}\text{Pm}$	3,66E+16	-31,9560%
$^{134}_{55}\text{Cs}$	1,80E+18	-11,8776%	$^{151}_{61}\text{Pm}$	6,56E+15	-30,3691%
$^{135}_{55}\text{Cs}$	8,24E+18	63,4186%	$^{141}_{59}\text{Pr}$	2,61E+19	2,8225%
$^{160}_{66}\text{Dy}$	3,62E+18	0,0000%	$^{143}_{59}\text{Pr}$	6,11E+17	-30,3797%
$^{161}_{66}\text{Dy}$	2,74E+19	0,0000%	$^{236}_{94}\text{Pu}$	9,11E+12	-8,8759%
$^{162}_{66}\text{Dy}$	3,69E+19	0,0000%	$^{238}_{94}\text{Pu}$	7,11E+17	0,5463%
$^{163}_{66}\text{Dy}$	3,60E+19	0,0000%	$^{239}_{94}\text{Pu}$	7,43E+19	-0,0434%

Suite de la page précédente					
$^{164}_{66} Dy$	4,08E+19	0,0000%	$^{240}_{94} Pu$	3,40E+19	-0,0224%
$^{153}_{63} Eu$	2,12E+18	-0,0607%	$^{241}_{94} Pu$	1,24E+19	-1,8155%
$^{154}_{63} Eu$	2,99E+17	-1,9194%	$^{242}_{94} Pu$	4,68E+18	-1,4405%
$^{155}_{63} Eu$	1,04E+17	-2,4407%	$^{103}_{45} Rh$	1,50E+19	3,4676%
$^{156}_{63} Eu$	7,21E+16	-29,5909%	$^{105}_{45} Rh$	4,21E+16	-29,4136%
$^{157}_{64} Gd$	9,24E+14	-12,4298%	$^{101}_{44} Ru$	2,60E+19	-0,0009%
$^{129}_{53} I$	4,45E+18	-0,0186%	$^{102}_{44} Ru$	2,46E+19	-0,0209%
$^{135}_{53} I$	1,53E+16	-30,4372%	$^{103}_{44} Ru$	1,81E+18	-30,0846%
$^{115}_{49} In$	4,94E+16	0,0554%	$^{147}_{62} Sm$	2,29E+18	83,8918%
$^{83}_{36} Kr$	1,74E+18	0,0025%	$^{149}_{62} Sm$	3,97E+16	-5,5559%
$^{139}_{57} La$	3,04E+19	0,0025%	$^{150}_{62} Sm$	6,36E+18	-3,2363%
$^{100}_{42} Mo$	3,21E+19	-0,0004%	$^{151}_{62} Sm$	2,13E+17	-1,3669%
$^{95}_{42} Mo$	2,84E+19	0,0109%	$^{152}_{62} Sm$	3,39E+18	-0,2459%
$^{97}_{42} Mo$	2,87E+19	0,0022%	$^{99}_{43} Tc$	2,84E+19	0,0055%
$^{143}_{60} Nd$	1,87E+19	0,9569%	$^{232}_{90} Th$	0,00E+00	0,0000%
$^{144}_{60} Nd$	2,27E+19	18,1716%	$^{233}_{92} U$	1,66E+11	-0,3949%
$^{145}_{60} Nd$	1,68E+19	0,0837%	$^{234}_{92} U$	5,93E+16	-0,0506%
$^{146}_{60} Nd$	1,58E+19	-0,0089%	$^{235}_{92} U$	1,53E+20	-0,0735%
$^{147}_{60} Nd$	2,08E+17	-30,0945%	$^{236}_{92} U$	6,04E+19	-0,0082%
$^{148}_{60} Nd$	8,66E+18	-1,0628%	$^{238}_{92} U$	2,13E+22	0,0040%
$^{237}_{93} Np$	3,49E+18	-0,2112%	$^{238}_{92} U$ NF	0,00E+00	0,0000%
$^{238}_{93} Np$	1,05E+16	-30,0809%	$^{131}_{54} Xe$	1,19E+19	0,0445%
$^{239}_{93} Np$	1,44E+18	-30,4080%	$^{133}_{54} Xe$	3,13E+17	-30,3571%
$^{16}_8 O$	4,47E+22	0,0000%	$^{135}_{54} Xe$	3,40E+15	-11,5818%
$^{233}_{60} Pa$	0,00E+00	0,0000%	$^{93}_{40} Zr$	2,73E+19	0,0102%

Il est intéressant de remarquer que la différence dépasse 1 % pour 37 isotopes. Mais nous remarquons que seuls 8 isotopes ont un inventaire isotopique final sous-estimé par un calcul à puissance nominale sur tout le coeur. Ces isotopes sont répertoriés au tableau 3.10, si nous les considérons en priorité c'est parce que l'erreur de leur estimation conduit à une sous-estimation de la puissance résiduelle total, ce qui n'est pas conservateur<sup>26</sup>.

TABLEAU 3.10 Isotopes dont le suivi de grappe en coeur à la puissance nominale sous-estime la valeur finale de plus de 1%.

$^{241}_{95}Am$	$^{242}_{95}Am$	$^{135}_{55}Cs$	$^{144}_{60}Nd$	$^{105}_{46}Pd$	$^{141}_{59}Pr$	$^{103}_{45}Rh$	$^{147}_{62}Sm$
-----------------	-----------------	-----------------	-----------------	-----------------	-----------------	-----------------	-----------------

### 3.4.3 Synthèse des variations isotopiques globales sur l'ensemble des grappes du coeur.

Lors de l'étude de l'évolution hors coeur de différentes grappes, nous avons isolé 5 isotopes contribuant fortement à la variation d'activité en fonction de la puissance utilisée pour irradier les grappes de combustible (tableau 3.7). Aucun de ces 5 isotopes n'est présent au tableau 3.10. Pourquoi ? Parce que la différence de leur concentration est telle qu'un calcul à puissance nominale surestime leur contribution. C'est à dire leur contribution à l'activité. Cette contribution varie d'ailleurs toujours (en valeur absolue) de plus de 1%. Elle va même jusqu'à environ 26% pour le cérium 144. Ce qui explique que ces isotopes nous aient interpellés lors de l'étude d'activité.

Tout le problème, ici, est donc de savoir si l'on cherche à évaluer de *combien* nous surestimons les concentrations en prenant un cas nominal et non statistique, et donc de *combien* nos calculs sont conservateurs et sécuritaires. Ou si nous nous contentons de

<sup>26</sup>On qualifie en général de "conservateur" un calcul qui surestime la valeur réelle. De ce fait, il conduit donc à prendre des normes de sécurité plus strictes.

cette estimation pour la plupart de nos applications, comme ce qui est fait à l'heure actuelle. Car, finalement, l'incertitude introduite par l'étude d'une grappe brûlée à la puissance nominale, plutôt qu'à une puissance réelle, n'a pas trop d'influence sur l'activité en sortie de coeur. Par exemple, un calcul précis de l'inventaire isotopique en fonction des puissances de combustion donne une concentration en césium 135 plus importante que le calcul à puissance nominale (comme vu à la section précédente). Seulement cet isotope et ses fils ont peu d'importance dans le calcul d'activité à long terme. Son suivi précis est nécessaire pour un calcul en condition d'accident, mais pas forcément dans la problématique du stockage.<sup>27</sup>

Pour la suite de notre étude, dont le but est de quantifier la puissance et la chaleur résiduelle, savoir *combien* est primordiale, car cela permettra de valider nos modèles. Nous ne pouvons pas, à priori, négliger les atomes qui ne semblent pas être influencés par la puissance en coeur ou qui le sont de manière conservatrice. De plus, l'introduction d'un nouveau facteur dans le calcul (puissance relâchée par réaction de décroissance) peut donner de l'importance à un isotope considéré comme insignifiant dans un calcul d'activité. Ainsi, un isotope très actif, mais relâchant peu d'énergie, aura moins d'impact qu'un autre, moins actif, mais produisant une puissance résiduelle importante. Les notions de puissance résiduelle et d'activité, bien que proches, sont différentes.

### 3.5 Conclusion

Nous avons remarqué, au cours de l'étude présenté dans ce chapitre, différentes variations des résultats lorsque nous modifions uniquement la puissance. Ces points sont de différents ordres : coefficient de multiplication effectif ou composition isotopique.

Nous l'avons vu, le  $k_{eff}$  varie peu avec la puissance, du fait notamment de la faible influence qu'a cette puissance sur les isotopes fissiles lorsque nous les comparons à burnup égale. Comme nous savons qu'un réacteur en fonctionnement nominal tant à

---

<sup>27</sup>C'est en cela que l'approximation est qualifiée de conservatrice.

aplatir le flux au maximum et donc minimiser les différences de puissances en cœur, l'approche actuelle qui consiste à prendre une puissance donnée unique pour le calcul de cellule est suffisante. Lorsque l'on s'intéresse à l'inventaire isotopique, le calcul est différent. Certains isotopes sont trop sensibles aux valeurs de flux pour que l'on néglige l'effet de la puissance. Nous l'avons vu, si une grappe a subi un niveau de flux moindre, son activité globale est également moins importante.

Utiliser un niveau de puissance nominale est donc conservateur dans une étude globale, mais la connaissance statistique des puissances peut être nécessaire pour obtenir un inventaire plus précis des isotopes en sortie de cœur dans l'idée de retraitement-recyclage au bout de quelques années passées en piscine. Par contre, pour ce qui est du stockage à long terme, la différence de puissance n'ayant quasiment aucun impact sur l'activité au-delà de 50 ans, une étude la prenant en compte est inutile pour modéliser ces problèmes.

Tous nos résultats confirment que cette conclusion s'applique aussi bien au réacteur CANDU-6 qu'au réacteur ACR-700.

## CHAPITRE 4

### ISOTOPES CONTRIBUANTS ET AMÉLIORATION DE LA BIBLIOTHÈQUE

Outre les différences induites par les variations de puissance en cœur évoquées précédemment, nous voulons également vérifier que nos ordres de grandeurs, en terme de puissance résiduelle, sont comparables à ceux disponibles dans la littérature. Or, les résultats utilisés pour valider la programmation des modules présentés au chapitre 2.3.2.2 sont relativement loin de ceux obtenus avec le modèle proposé par WAY et WIGNER dont il avait été question au chapitre 1.3.2.1 (figure 1.4) et que nous appellerons « *modèle simplifié* » dans la suite du rapport.[Reuss, 2003a]

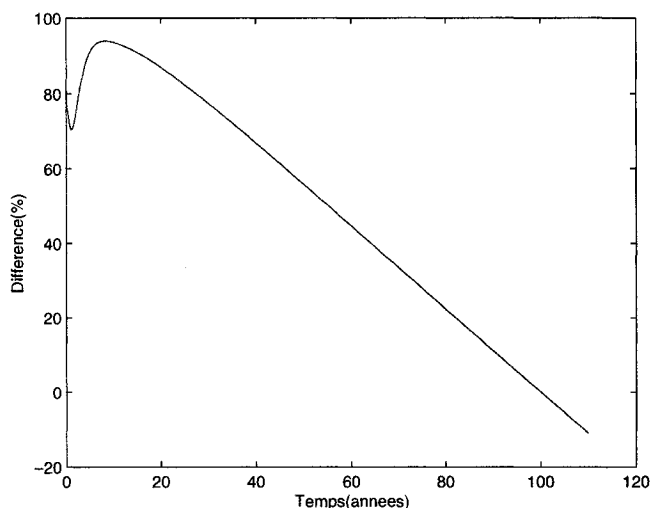
Ces résultats avaient été obtenus en utilisant les données de base que sont les énergies de Q-Value qui ne permettent pas d'évaluer la puissance résiduelle utile. Conformément à ce que nous avons préconisé à la fin du chapitre 1, nous nous devons de comprendre les différents rôles isotopiques. Ceci permettra le traitement des données associées à chaque isotopes et notamment le détail des énergies suivant le type de rayonnement. C'est ce qui va être présenté dans ce chapitre.

#### 4.1 Axe de recherche

La comparaison entre les différentes puissances résiduelles évoquée en introduction nous donne la figure 4.1. Il existe une différence entre notre modèle initial et celui de comparaison qui est deux fois plus élevé (100% de plus) durant les premières années suivant la sortie du cœur.

La bibliothèque que nous utilisons se *contente* de 80 isotopes (tableau 2.3). Ces isotopes ont été choisis pour leur rôle neutronique au sein du réacteur, puisque le but ha-

FIGURE 4.1 Différence de puissances résiduelles entre l'évaluation de DRAGON utilisant la bibliothèque WIMS et celle du modèle simplifié.[Reuss, 2003a]



bituel de l'utilisation de cette liste est le calcul en cœur. Mais il est fort possible que plusieurs isotopes omis aient un rôle conséquent pour le calcul de chaleur résiduelle. En effet, selon d'autres sources, il existe des isotopes qui, à eux seuls, produisent 50% environ de la puissance résiduelle en sortie de cœur, durant les 3 premières années.

[Etherington, 1958] Or nous ne suivons explicitement aucun de ces isotopes. Nous les avons répertoriés dans le tableau 4.1. Et nous avons décidé d'évaluer *manuellement* leurs contributions avant de les intégrer à la bibliothèque. Par *manuellement* nous entendons la construction d'un modèle indépendant de DRAGON, traitant les données au moyen d'un tableur, dans le but de connaître l'importance de leurs contributions à la puissance résiduelle.

Pour la période des années entre 3 et 50 ans, où notre calcul était également sous-évalué, nous avons choisi de nous fier aux isotopes choisis lors de la validation du codes de calcul ORIGEN-S<sup>1</sup> avec les CANDU-6.[Gauld et al., 1995] À partir de cette liste nous

<sup>1</sup>Oak Ridge Isotope Generation and Depletion Code

avons sélectionné 35 isotopes non contenus dans la bibliothèque de départ ni dans la liste du tableau 4.1. En épurant encore cette liste des isotopes stables (inutiles pour un calcul de puissance résiduelle) et de ceux aux demie-vies trop courtes pour avoir un intérêt au-delà d'une journée, seuls les 9 isotopes présentés dans le tableau 4.2 ont finalement été conservés. Pour parfaire notre étude, nous avons également étudié la carte isotopique autour des produits de fission ayant un rendement de fission supérieur à 2,5% pour l'uranium 235 et le plutonium 239 pour vérifier qu'il ne nous manquait pas de chaîne importante. En effet, en deçà de 2,5% les rendements de fissions chutent très fortement. Nous avons d'abord pris 1% en borne de référence, mais les isotopes dont les rendements se situent entre 1 et 2,5% ont un impact sur la puissance résiduelle trop faible et sont trop peu nombreux. Nous avons donc reconsidéré la borne de notre étude et conservé 2,5%. Ainsi avons nous répertorié 5 autres isotopes susceptibles de contribuer. Ces isotopes sont répertoriés au tableau 4.3 avec la description des raisons de ces choix à la section 4.1.2.

Ensuite, nous avons collecté des informations (rendement de fission pour créer ces isotopes en coeur, demie-vie et énergie de décroissance) les concernant grâce à la banque de données de l'Agence de l'Énergie Nucléaire.[Baum et al., 2003] Puis nous avons évalué leurs concentrations selon la méthode explicitée dans le chapitre 4.2.1, avant de calculer leur contribution à la puissance résiduelle.

#### **4.1.1 Présentation des nouveaux produits de fissions suivis**

Nous avons parlé précédemment de suivre différents isotopes connus comme contribuant. Dans le tableau 4.1[Etherington, 1958], viennent les isotopes cités par M.Etherington. Il s'agit d'isotopes ayant des demie-vies de quelques jours, tel le strontium 89 dont sa demie-vie est de 50 jours environ, donc une activité importante ; ou ayant des rendements de fission élevés telle la chaîne de nombre de masse 140 dont le rendement est de 6,22%.



TABLEAU 4.1 Tableau des isotopes à étudier selon M.Etherington.

strontium 89	strontium 91	yttrium 91	technetium 100
barium 140	lanthane 140	praseodyme 144	

Dans le tableau 4.2, nous avons rassemblé d'autres isotopes manquant cités par le rapport concernant ORIGEN-S.[Gauld et al., 1995] Ces isotopes ont des caractéristiques très proches de celles présentées précédemment, mais nous retrouvons également des isotopes dont les noms sont habituellement répertoriés dans les procédures d'accident tel le césium 137 tristement célèbre depuis Tchernobyl. Il est à noter que cette seconde liste comprenait également la plupart des isotopes cités au tableau 4.1, ce qui nous a permis de confirmer, par recoupement, nos choix.

TABLEAU 4.2 Tableau des isotopes à étudier selon le rapport concernant ORIGEN-S

strontium 90	yttrium 90	zirconium 95	niobium 95	ruthenium 106
rhodium 106	césium 137	cérium 143	europium 152	

#### 4.1.2 Cartographie des produits de fission

Une autre manière de recouper notre information fut la cartographie de nos différents isotopes. Nous avons donc reporté sur un graphique en deux dimensions les différents isotopes suivis. Les figures 4.3, 4.4 utilisent toutes les deux le principe évoqué au chapitre 1.2.2.[Magill et Galy, 2005b, Baum et al., 2003]

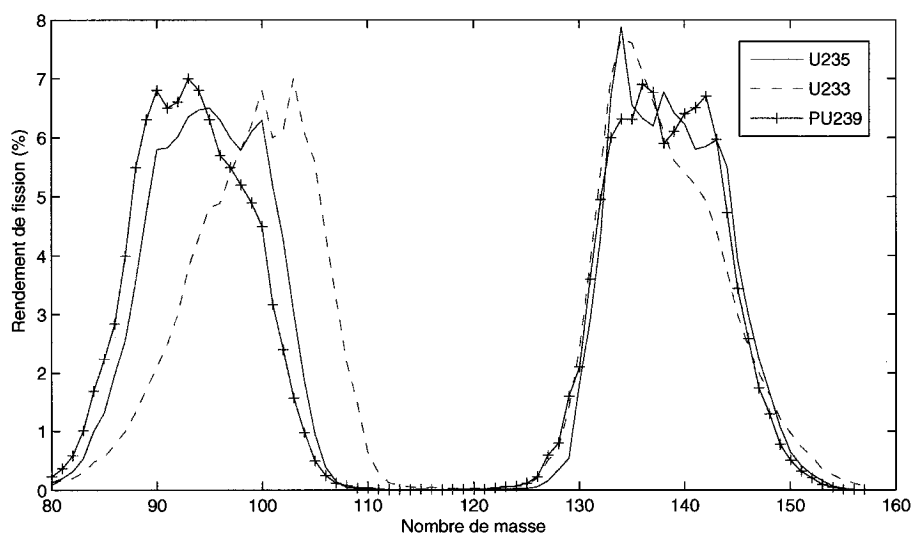
Il nous a fallu borner nos recherches pour sélectionner seulement les isotopes utiles à notre travail. Ainsi avons-nous mis en évidence les isotopes stables, car ils permettent de borner notre domaine d'étude sur la gauche. En effet, une fission produit forcément des isotopes avec un nombre important de neutrons par rapport aux protons<sup>2</sup>, c'est à dire

<sup>2</sup>Ceci est dû à la richesse importante en neutrons des actinides.

des isotopes se situant à droite de *la vallée de stabilité*<sup>3</sup>, créée par les noyaux stables. Il faut savoir que, plus un isotope représenté sur cette table est éloigné de la vallée de stabilité, plus il sera instable et plus sa demi-vie sera courte. Nous avons donc également pu tracer une frontière dynamique à droite sous la vallée de stabilité en fixant la limite à une demi-vie isotopique de l'ordre du jour.

Pour borner nos zones d'étude le long de la vallée, nous avons fait appel à la notion de *rendement de fission*. En effet, nous connaissons statistiquement la probabilité qu'une fission induite par un neutron de basse énergie aboutisse à un noyau de nombre de masse donné. Cette probabilité est répartie selon une courbe particulière, présentée à la figure 4.2.[Baum et al., 2003] Nous y observons deux zones bien distinctes où le rendement de

FIGURE 4.2 Rendement de fission en fonction du nombre de masse.

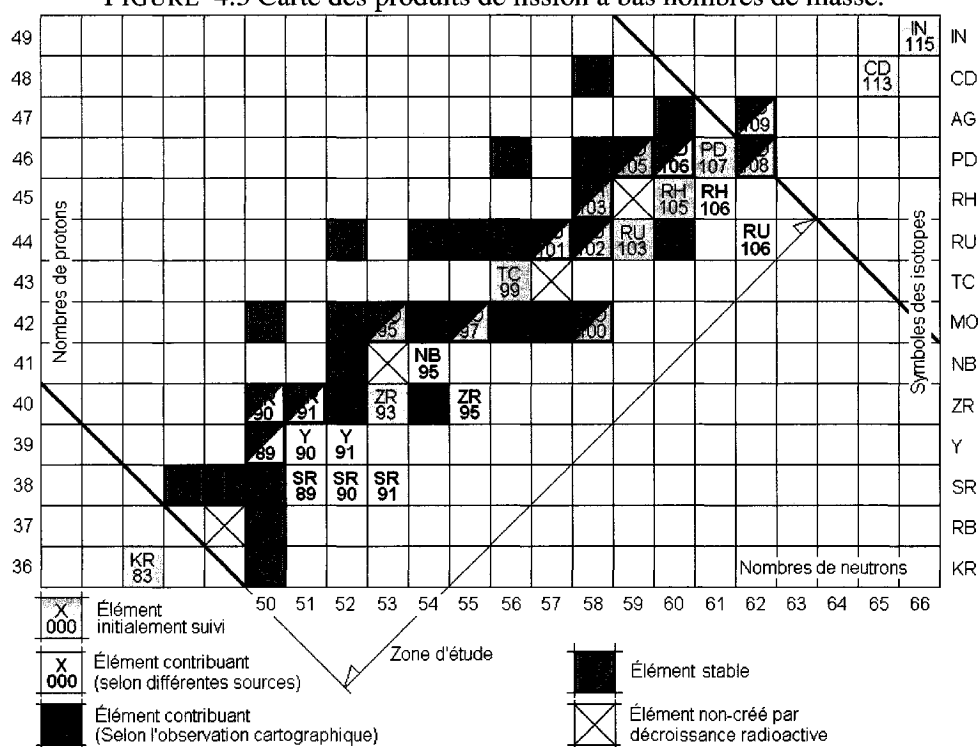


production est supérieur à 2,5%. Ce sont ces deux zones qui nous ont conduits à dessiner

<sup>3</sup>La vallée de stabilité est la ligne tracée par les isotopes stables sur la table en deux dimensions présentées ici. L'idée de *vallée* se comprend très bien si l'on ajoute une dimension à la table : celle de l'énergie interne à chaque isotope. Par rapport à l'isotope stable, les isotopes instables sont forcément de plus haute énergie. C'est pour cela qu'ils sont poussés à perdre cet excédent d'énergie par décroissance radioactive.

les deux graphiques 4.3 et 4.4. Nous notons également la proximité des courbes liées aux uranium 233 et uranium 235, qui nous permet de penser que les isotopes sélectionnés dans cette étude, pourront également être considéré dans le cadre d'un cycle au thorium (en ajoutant simplement une ou deux chaînes de décroissance pour des nombres de masse légèrement inférieurs à 85). Enfin, nous remarquons l'étrange déformation de la courbe liée au plutonium pour les bas nombres de masse. Si certains isotopes important pour la puissance isotopique ont de faibles nombres de masse, la variation du burnup (gestion du combustible) ou du rendement de surgénération (selon les filières de réacteur) aura donc un impact non négligeable sur la puissance résiduelle. En effet l'importance de la puissance de fission du plutonium 239 augmente avec le burnup dans le cœur d'un CANDU, la population de produits de fission générés s'en trouve donc modifiée.

FIGURE 4.3 Carte des produits de fission à bas nombres de masse.



Le premier des 2 graphiques (4.3) nous permet de remarquer le faible suivi que fait la bibliothèque originale sur les isotopes de faible nombre de masse. De plus, nous remarquons un décalage entre la zone d'étude (nombre de masse entre  $A = 83$  à  $A = 109$ ) et la zone couverte par les isotopes présents dans la bibliothèque (nombre de masse entre  $A = 93$  à  $A = 115$ )<sup>4</sup>. Ceci nous laisse imaginer que la fission du plutonium est mieux représentée par cette bibliothèque que la fission de l'uranium<sup>5</sup>. Ainsi la littérature complète-t-elle bien la zone d'étude, en s'intéressant notamment aux chaînes isotopiques de nombre de masses inférieures à 93 (Isotopes présentés en jaune sur les figures). Entre les deux, nous avons choisi de rajouter le molybdène 99, comme père du technetium 99, en raison de sa demie-vie d'environ 2 jours, ceci afin de mieux modéliser la puissance en sortie directe du cœur.

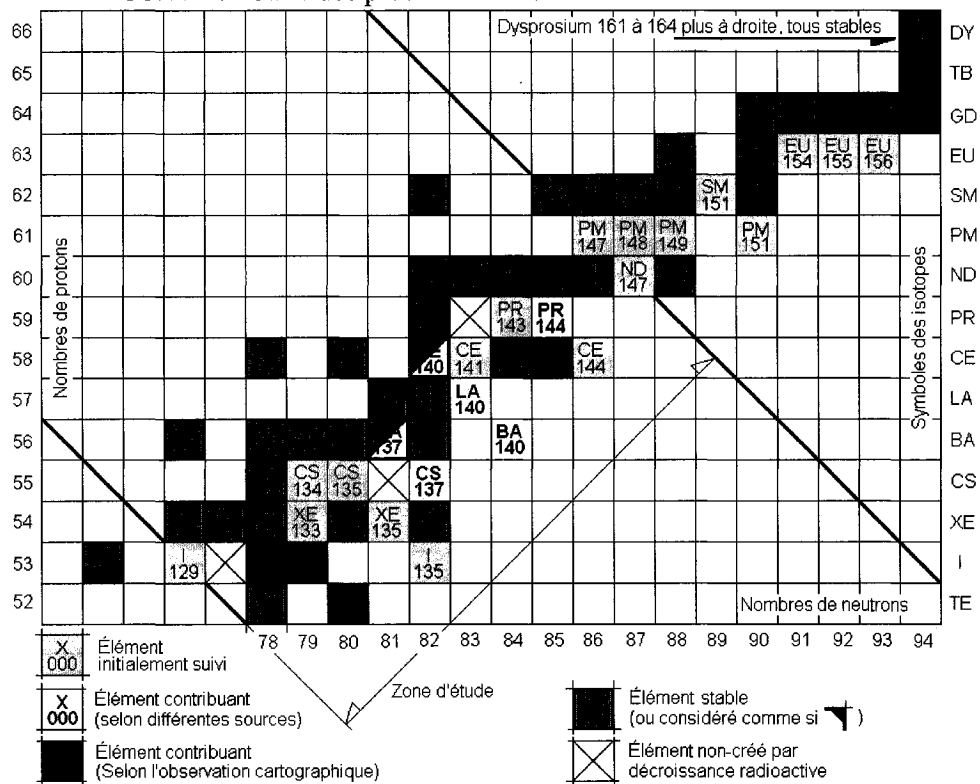
Il restait néanmoins un dernier type d'éléments : ceux situés en diagonale entre deux isotopes stables. Comme l'isotope stable de même nombre de masse, mais ayant un nombre de neutrons supérieur rend impossible sa production depuis la fission. Nous avons d'emblée écarté ce type d'isotopes de nos recherches : il ne peut être créé dans un réacteur que par absorption neutronique, ou décroissance  $\alpha$ . Or, si la première n'a pas été considérée dans la bibliothèque de départ, c'est parce qu'elle est négligeable ; et la seconde est improbable dans cette zone de la carte isotopique. Nous les avons représenté sur la carte par des croix.

Considérons ensuite les isotopes dont les nombres de masse sont situés entre 127 et 164 (tel que présenté à la figure 4.4). Leur répartition dans la bibliothèque de départ est bien plus homogène. Mais plusieurs isotopes nous ont semblé devoir encore être rajoutés, même après la mise à jour effectuée grâce aux différentes sources bibliographiques. Il s'agit notamment de 2 isotopes de l'iode (131 et 132) et d'un de leur père (le tellure 132) car leurs demie-vies nous laissaient présager une contribution relativement importante en

<sup>4</sup>Les isotopes de l'indium 115 et cadmium 113, suivit pour leur forte influence neutronique, sont largement hors de la zone d'étude

<sup>5</sup>Déduction faite de l'observation de la courbe des rendements de fission, 4.2, présentée plus haut.

FIGURE 4.4 Carte des produits de fission à hauts nombres de masse.



sortie de cœur. De même, nous avons choisi de rajouter le cérium 143.

Finalement, l'observation de la cartographie isotopique nous aura permis de cibler 5 nouveaux isotopes potentiellement contributeurs, nous les avons rassemblés dans le tableau 4.3

TABLEAU 4.3 Tableau des isotopes à suivre selon la lecture de la table isotopique.

molybdène 99	iode 131	iode 132	tellure 132	cérium 143
--------------	----------	----------	-------------	------------

#### 4.1.3 Le cas des actinides

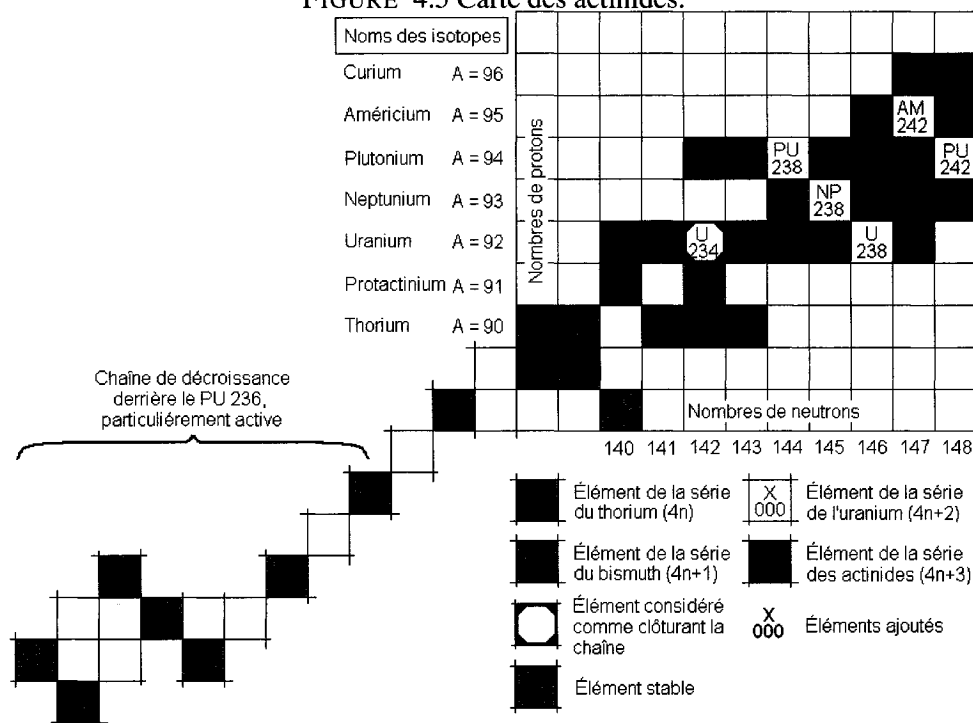
Sur le même principe, nous avons également rassemblé sur la carte 4.5 les noyaux lourds suivis par DRAGON, pour savoir s'il était justifié ou non de les suivre hors du cœur selon les périodes de temps examinées.

La figure 4.5 représente les 4 chaînes de filiation autour desquelles tous les atomes lourds gravitent. Par décroissances successives, les atomes lourds rejoignent forcément l'une de ces chaînes qui va les mener à l'un des 4 isotopes suivants : plomb 206, plomb 207, plomb 208 ou bismuth 209. Nous avons sélectionné les isotopes d'atomes lourds ayant une demie-vie inférieure à  $5.10^5$  ans, ainsi, au bout de 100000 ans, seulement 13% de la concentration initiale aura disparu. Selon ce critère, la plupart des isotopes lourds sont éliminés (l'uranium 235 par exemple à une demie vie de 0,7038 milliard d'années) et nous avons donc choisi de stopper ces 4 chaînes au niveau des uranium 233, uranium 234, uranium 235, thorium 232, car leurs demie-vies dépassent de beaucoup nos périodes de calcul. Mais la chaîne partant du plutonium 236 contourne ce problème en rattrapant la chaîne aboutissant au plomb 208 au-delà du thorium 232. Et tous les isotopes issus de cette filiation ont des activités très importantes<sup>6</sup>. Nous veillerons donc à suivre l'activité

---

<sup>6</sup>Ils se désintègrent rapidement.

FIGURE 4.5 Carte des actinides.



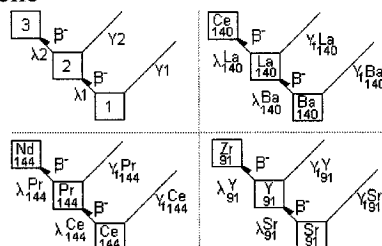
particulière de cette chaîne dans les décroissances  $\alpha$ .

#### 4.1.4 Le profil de l'isotope contribuant.

Mais pourquoi ces isotopes sont-ils si souvent cités, et quelles sont les raisons qui ont permis qu'une simple lecture de carte nous en révèle de nouveaux ? En fait, tous ces isotopes correspondent toujours à un même schéma de désintégration lorsque nous les considérons, non pas de façons indépendantes, mais bien intégrés à une *famille* isotopique. L'observation des familles des isotopes du tableau 4.1, c'est à dire la famille de l'yttrium 91, celle du lanthane 140 et celle du praseodyme 144, collent parfaitement au schéma en trois acteurs évoluant l'un vers l'autre présenté à la figure 1.1 du chapitre 1.2.2. Pour bien visualiser ce schéma de désintégration, qui est aussi observable avec les

différents isotopes du tableau 4.2, nous avons rassemblé à la figure 4.6 les schémas de désintégration semblables de ces différents isotopes.

FIGURE 4.6 Comparaison des schémas de désintégration responsable d'une forte contribution en puissance résiduelle



Sur ce schéma général de la figure 4.6, nous observons les éléments 1 et 2, produits de fissions, se désintégrer vers l'isotope 3, stable. Ce type de filiation est fréquent, il ramène la plupart des produits de fission vers la zone de stabilité par décroissance  $\beta$ . [Magill et Galy, 2005b] Ici, c'est la combinaison de demi-vies particulières qui donne de l'importance à ces chaînes radioactives lors du refroidissement du combustible. En fait, l'isotope nommé 1 a une demi-vie moyenne qui lui permet de se désintégrer sur une période de deux à une dizaine d'années vers l'isotope 2, en maintenant la production de ce dernier à un niveau presque constant. L'isotope 2, lui, a une demie-vie très courte, il est donc éliminé quasiment aussi vite qu'il est créé<sup>7</sup> : il est donc aussi actif que son père. Sa production constante combinée à une activité importante simultanée des 2 isotopes peu favoriser la contribution à la puissance résiduelle de leur famille, si l'énergie qu'ils dégagent est importante. Il suffit donc que l'isotope 1 ait été produit en quantité non négligeable dans le cœur, pour que la puissance issue de ces désintégrations soit non négligeable. *A contrario*, un cas plus classique de famille radioactive, où le fils (numéro 2) a une demie-vie bien plus importante que le père voit les activités des isotopes atteindre leurs maximums successivement, leur participation est donc plus étalée sur le

<sup>7</sup>C'est d'ailleurs pour cette raison qu'il a été mis de côté pour les calculs en cœur, notamment si sa section efficace n'en faisait pas un poison neutronique.



temps et plus discrète.

## **4.2 Validation et choix des isotopes à intégrer à notre calcul**

L'introduction de nouvelles données de chaîne de décroissance dans DRAGON nécessitait un travail de reprogrammation partiel de quelques procédures. Avant de nous lancer dans ce fastidieux travail, nous avons choisi de vérifier qu'il pourrait effectivement porter ses fruits et aboutir à une amélioration sensible de notre évaluation de la puissance résiduelle. Ainsi présentons-nous ici, une méthode de recherche et validation que nous avons développée pour confirmer l'influence des isotopes identifiés dans la littérature (4.1 et 4.2).

L'ensemble des simplifications et choix effectués dans cette section sont spécifiques à cette méthode de calcul. Elle qui n'avait pour but que l'utiliser d'un tableur en lieu et place de DRAGON afin de vérifier rapidement et facilement si cet axe de recherche avait un intérêt.

### **4.2.1 Méthode de validation**

Il nous a fallu évaluer les concentrations isotopiques de plusieurs éléments pour lesquels nous n'avions que des données collectées dans la littérature et qui n'avaient pas été suivis par DRAGON. Nous avons pour cela posé plusieurs hypothèses avant d'aboutir à l'approximation présentée ici.

#### **4.2.1.1 Caractéristiques du réacteur**

L'équation différentielle d'évolution d'un isotope est constituée de différents termes dépendamment des contributions en création, (issue de fissions ou décroissance depuis un parent par exemple) ou en destruction (décroissance vers un isotope fils ou absorption

neutronique). Pour évaluer complètement les concentrations isotopiques, il faut faire un calcul de coeur et connaître le flux neutronique. Or, nous désirions simplement évaluer les concentrations : pour simplifier, nous avons donc mis de côté toutes les réactions de type neutronique<sup>8</sup>, considérant que les isotopes étudiés n'avaient pas de section efficace d'absorption conséquente puisqu'ils avaient été ignorés lors de la création de la bibliothèque pour DRAGON. Seules restaient les créations et destructions par décroissance et par fission.

Nous avons tout d'abord considéré un isotope stable créé uniquement par fission<sup>9</sup> : l'équation qui régit la concentration de cet isotope sera alors très simple. Prenons par exemple le xénon 131. Son équation d'évolution sous flux est la suivante :

$$\frac{d(N_{54}^{131}Xe(t))}{dt} = Y_f^{131}Xe \Sigma_f \Phi \quad (4.1)$$

C'est à dire que sa forme résolue (avec comme condition initiale :  $N_{54}^{131}Xe(0) = 0$ ) :

$$N_{54}^{131}Xe(t) = Y_f^{131}Xe \Sigma_f \Phi t \quad (4.2)$$

La seule inconnue de l'équation 4.2 est donc le facteur  $\Sigma_f \Phi$ , appelé aussi *taux de fission*. Or ce facteur est une caractéristique de la manière dont a été brûlée la grappe. Comme nous menions, en parallèle, les calculs présentés au chapitre 3, nous nous sommes basés sur ces résultats afin d'évaluer ledit facteur pour des grappes à la sortie du coeur. Outre le xénon 131, nous avons choisi d'autres isotopes équivalents (i.e : prométhium 151, iode 135...) et calculé, par la même méthode, leur valeur de taux de fission associé. A priori, cette valeur est la même pour tous les isotopes, mais notre méthode ne permet pas de la calculer avec suffisamment de précision pour se contenter d'une évaluation, car les équations utilisées pour l'obtenir font intervenir de nombreuses simplifications. Nous avons donc finalement moyenné les différents résultats et fixé le taux de fission à  $7.10^{12}$  (pour un temps de séjour en coeur calculé en secondes).

---

<sup>8</sup>absorption...

<sup>9</sup>Selon la bibliothèque isotopique utilisée lors de notre simulation sous DRAGON

Cette méthode est basée sur l'évaluation d'un coefficient  $\Sigma_f \Phi$  qui repose elle-même sur un modèle simplifié de décroissance radioactive selon les hypothèses suivantes :

1. Les contributions neutroniques (négatives ou positives) sont négligées.
2. Moyenne de quelques calculs sur des isotopes types (xénon 131, xénon 133, prométhium 151).
3. Isotopes types eux-mêmes choisis pour leur stabilité et leur création directe par fission selon la bibliothèque de calcul DRAGON et non la réalité.
4. Valeur des rendements de production depuis une fission évaluée sur la base de réaction pour 50% issue de l'isotope d'uranium 235, et pour 50% de l'isotope de plutonium 239.

C'est très certainement la seconde simplification, imposée par la première (qui nous empêchait d'avoir des coefficients tous équivalents) qui introduit le plus d'incertitude dans notre modèle. La simplification 3 est imposée tout simplement par l'origine des données : évaluations numériques. Nous sommes confrontés ici à la limite même des méthodes de calcul.

La dernière hypothèse enfin, est basée sur l'observation communément admise qu'un réacteur CANDU-6 à l'équilibre du rechargement produit 50% de son énergie par la fission du plutonium 239. Les équations complètes d'évolution des noyaux utilisent différents rendements de fission selon le noyau dont est issue le produit de fission. Pour simplifier le calcul, nous avons créé un *rendement de fission moyen* permettant de calculer plus rapidement les concentrations isotopiques indépendamment du fait que la fission qui a créé l'isotope calculé soit issue de l'uranium 235 ou du plutonium 239. [Nordborg, 2003] Un isotope ayant un rendement de fission  $a$  depuis l'uranium 235 et  $b$  depuis le plutonium 239 aura alors un rendement de fission  $Y_f^{AX} = \frac{a+b}{2}$ .

Il s'agit ici d'une évaluation de la contribution potentielle de tel ou tel isotope, et non d'un calcul précis de la puissance résiduelle. Si nous intégrons, par la suite, les isotopes sélectionnés dans un calcul DRAGON nous pourrions, sans difficulté, évaluer leur contribution neutronique et utiliser les rendements détaillés en fonction de l'isotope

fissionné.

#### 4.2.1.2 Chaîne de désintégration

Nous nous sommes ensuite intéressés au modèle de la chaîne de désintégration des isotopes 1 et 2 pour la famille radioactive décrite à la figure 4.6. Au chapitre 1.2.2 où cette figure avait d'abord été présentée, nous avons décrit la forme différentielle des équations de champs des noyaux. En fait, il existe deux modélisations mathématiques possibles :

- La forme différentielle
- La forme temporelle

La forme différentielle est la plus souple à utiliser pour visualiser et comprendre les créations et destructions isotopiques, chaque contribution ajoutant un terme simple à l'un des deux membres de l'égalité. Seulement cette forme est limitée par la dépendance entre les termes et donc l'impossibilité de calculer facilement les concentrations isotopiques à un instant donné. Ainsi avons-nous également développé la forme temporelle de ces équations pour un usage plus aisé. Par exemple, avec la famille du cérium 144, les équations différentielles 1.12 et 1.13 du chapitre 1.2.2 deviennent les équations 4.3 et 4.4.

$$\frac{d(N_{58}^{144}Ce(t))}{dt} = -\lambda_{58}^{144}Ce N_{58}^{144}Ce(t) + Y_f^{144}Ce \Sigma_f \Phi \quad (4.3)$$

$$\frac{d(N_{59}^{144}Pr(t))}{dt} = -\lambda_{59}^{144}Pr N_{59}^{144}Pr(t) + \lambda_{58}^{144}Ce N_{58}^{144}Ce(t) + Y_f^{144}Pr \Sigma_f \Phi \quad (4.4)$$

La forme temporelle du précurseur est calculé très facilement avec comme conditions initiales  $N_1(0) = 0^{10}$ , et donne l'équation suivante (4.5) :

$$N_{58}^{144}Ce(t) = \frac{Y_f^{144}Ce \Sigma_f \Phi}{\lambda_{58}^{144}Ce} (1 - e^{-\lambda_{58}^{144}Ce t}) \quad (4.5)$$

---

<sup>10</sup>Donc ici  $N_{58}^{144}Ce(0) = 0$

Pour la forme temporelle de l'isotope fils, nous avons utilisé la méthode de facteur d'intégration (à coefficients constants)<sup>11</sup>. [Farlow, 1994] En effet le précurseur est modélisé par une fonction exponentielle (4.5), réinjectée dans l'équation 4.4 nous obtenons donc une équation différentielle du premier ordre avec un second membre polynomial exponentiel.

Or la méthode proposée est particulièrement adaptée à la résolution de ce type de problème. Elle se base sur la propriété 4.8 pour résoudre l'équation 4.6 :

$$\frac{d(y(t))}{dt} + ay(t) = f(t) \quad (4.6)$$

$$e^{at} \left( \frac{d(y(t))}{dt} + ay(t) \right) = e^{at} f(t) \quad (4.7)$$

$$\text{Soit : } \frac{d(e^{at}y(t))}{dt} = e^{at} \left( \frac{d(y(t))}{dt} + ay(t) \right) \quad (4.8)$$

$$\text{Alors : } \frac{d(e^{at}y(t))}{dt} = e^{at} f(t) \quad (4.9)$$

$$y(t) = e^{-at} \left( \int f(t)e^{at} dt + Cst \right) \quad (4.10)$$

Finalement, nous obtenons après simplifications l'équation 4.11 pour le praseodyme 144.

$$\begin{aligned} N_{59}^{144Pr}(t) = & \frac{\Sigma_f \Phi}{\lambda_{59}^{144Pr} (\lambda_{59}^{144Pr} - \lambda_{58}^{144Ce})} \\ & \left( (Y_f^{144Ce} + Y_f^{144Pr}) (\lambda_{59}^{144Pr} - \lambda_{58}^{144Ce}) (1 - e^{-\lambda_{59}^{144Pr} t}) \right. \\ & \left. + Y_f^{144Ce} \lambda_{59}^{144Pr} (e^{-\lambda_{59}^{144Pr} t} - e^{-\lambda_{58}^{144Ce} t}) \right) \end{aligned} \quad (4.11)$$

Le cas de  $^{144}_{58}Ce$  permet d'illustrer certaines limites exposées au paragraphe 4.2.1.1, en effet, l'évolution en cœur de la concentration de cet isotope est calculée par DRAGON en prenant en compte les absorptions neutroniques que subit cet élément (notamment

<sup>11</sup> Integrating factor methode (constant coefficient).

une réaction  $(n, \gamma)$  vers le néodyme 145). Or ici nous avons négligé les effets de ces absorptions et donc surestimé légèrement la concentration de cet isotope, donc également celui de son fils, le  $^{144}_{59}\text{Pr}$ . C'est donc avec ce modèle et les données de chaque isotope que nous avons pu évaluer les concentrations en sortie de coeur des différents isotopes étudiés.

#### 4.2.1.3 Évolution

Par la suite, nous avons voulu observer la contribution dans le temps de ces ajouts isotopiques, afin de savoir si notre modèle se rapprochait de ceux présentés par la littérature. [Hydro Québec, 2004, Reuss, 2003b]

Nous avons donc modélisé les équations d'évolution des isotopes sur le même principe que pour celles présentées à la section précédente, mais sous flux nul ( $\Sigma_f \Phi = 0$ ) et avec des conditions initiales non nulle (concentration en sortie de coeur de l'isotope  $i$  prise en condition initiale et notée  $N_i(0)$ ). Par exemple, pour la chaîne 1.1, nous aurions les équations différentielles 4.12 et 4.13. Leurs formes temporelles sont présentées aux équations 4.14 et 4.15.

$$\frac{d(N_1(t))}{dt} = -\lambda_1 N_1(t) \quad (4.12)$$

$$\frac{d(N_2(t))}{dt} = -\lambda_2 N_2(t) + \lambda_1 N_1(t) \quad (4.13)$$

$$N_1(t) = N_1(0)e^{-\lambda_1 t} \quad (4.14)$$

$$N_2(t) = \frac{1}{\lambda_2 - \lambda_1} \left( N_1(0)\lambda_1 e^{-\lambda_1 t} - \left( \lambda_1(N_1(0) + N_2(0)) - N_2(0)\lambda_2 \right) e^{-\lambda_2 t} \right) \quad (4.15)$$

## 4.2.2 Résultat

À partir du modèle précédemment présenté, nous avons obtenu des estimations de contribution à la puissance résiduelle que nous présentons ici à titre informatif. L'essentiel du travail de compréhension des contributions isotopiques des différents isotopes sera effectué dans le chapitre 5, une fois de réels calculs de puissance résiduelle effectués. L'ensemble des données que nous allons présenter ici sont issues des calculs effectués dans DRAGON avec la bibliothèque WIMS (courbes labélisées « DRAGON ») puis traités dans le tableur, selon la méthode présentée précédemment, pour évaluer les contributions des isotopes supplémentaires et les additionner au résultat initial (courbes labélisées « DRAGON+isotopes sélectionnés »).

### 4.2.2.1 Puissance en sortie de coeur

Nous avons finalement pu, à partir des concentrations évaluées des différents isotopes des tableaux 4.1 et 4.2, calculer leurs contributions en puissance sur la grappe totale. Les résultats de contribution isotopique des différents isotopes que nous proposons d'étudier sont consignés dans le tableau 4.4, à titre de comparaison, nous y avons ajouté la contribution en puissance de quelques isotopes classiques déjà calculés par DRAGON et donc par les modules EQV et EDC.

Nous remarquons immédiatement que, mis à part le technetium 100, les isotopes de la première série contribuent pour des valeurs allant de 60 à  $1300 \frac{W}{grappe}$  au moment de la sortie du coeur. À titre de comparaison, il faut se souvenir que le calcul sans ces isotopes aboutissait à une puissance résiduelle en sortie de coeur de  $1582 \frac{W}{grappe}$ . Le *non-résultat* du technetium 100 était d'ailleurs à prévoir, puisque l'étude de sa position sur la cartographie (section 4.1.2) nous montre un isotope coincé entre deux atomes stables, qui ne peut être produit que par absorption neutronique dans le technetium 99, absorption hautement improbable, car sa section efficace est de quelques barns seulement.

TABLEAU 4.4 Résultat de la contribution isotopique en sortie de coeur.

Isotopes supplémentaires			
Nom	Q-value (MeV)	Demie-vie	Contibution énergétique (W/grappe)
$^{144}_{59}Pr$	2,9969	17,28 minutes	371,09
$^{140}_{56}Ba$	1,034	12,75 jours	119,06
$^{140}_{57}La$	3,761	40,27 heures	866,67
$^{137}_{55}Cs$	1,176	30,01 années	2,35
$^{106}_{45}Rh$	3,63	29,80 secondes	343,31
$^{106}_{44}Ru$	0,0384	373,59 jours	0,67
$^{100}_{43}Tc$	3,2025	15,80 secondes	2,76E-04
$^{95}_{41}Nb$	0,925	34,98 jours	214,58
$^{95}_{40}Zr$	1,121	65,50 jours	117,37
$^{91}_{38}Sr$	2,13	9,63 heures	167,17
$^{91}_{39}Y$	1,5456	58,51 jours	242,65
$^{90}_{38}Sr$	0,546	28,80 années	0,70
$^{90}_{39}Y$	2,27	2,67 jours	356,38
$^{89}_{38}Sr$	0,583	50,53 jours	36,25
Donnée DRAGON			
Puissance résiduelle totale			1582
Dont :			
Contrubution du $^{144}_{58}Ce$			72,72
Contribution du $^{135}_{53}I$			321,48
Contribution du $^{148}_{61}Pm$			9,76
Contribution du $^{240}_{94}Pu$			0,125
Contribution du $^{133}_{54}Xe$			6,25

Le cérium 143 nous a semblé inutile à étudier, car sa demie-vies de seulement 33 heures ne semble pas importante. Cependant, nous l'avons considéré dans le tableau 4.3 en raison de son très fort rendement de production. Finalement, nous ne le suivrons pas ici, mais nous le garderons pour une étude précise des contributions isotopiques si ce chapitre conclut en la nécessité d'ajouter des isotopes dans la chaîne de décroissance de la bibliothèque.

L'euporium 152 est impossible à évaluer suivant la méthode présentée ici puisqu'il



n'est quasiment pas produit par fission car il est situé à gauche d'un atome stable, mais seulement par absorption neutronique dans l'euporium 151. Cette absorption neutronique est importante (De l'ordre de 9000 barns), mais elle est handicapée par la longue demie vie du précurseur, le samarium 151 qui est de 90 ans, ce qui rend très improbable sa production dans un coeur de réacteur. Il y a donc peu de chance pour que nous produisions de l'euporium 152, c'est donc pour cela que nous l'avons tout simplement écarté de notre analyse.

Les autres isotopes de la série du tableau 4.2 ont donné des contributions en sortie de coeur entre 0,5 et  $350 \frac{W}{grappe}$ , en fait, c'est dans le temps qu'ils révèlent l'utilité de les avoir suivi tel que cela sera démontré à la section suivante (4.2.2.2).

Si nous sommons ces valeurs, la puissance en sortie de coeur s'élève à environ 4400 watts par grappe, ce qui est beaucoup plus réaliste, voir même légèrement surestimé. Cette surestimation vient essentiellement des hypothèses négligeant les disparitions isotopiques par absorptions neutroniques<sup>12</sup>, mais aussi de l'utilisation de valeur de Q-value, et non du détail des énergies. Les valeurs avec lesquelles nous avons pu comparer cette estimation, bien que nombreuses, sont parfois disparates. Ceci est dû à la définition de puissance « *en sortie du coeur* », qui n'est pas la même pour chacun. En effet, la puissance résiduelle hors flux neutronique diminue très rapidement après l'arrêt. Une mesure à  $t = 0$  s après l'arrêt du réacteur est très différente de celle à  $t = 1$  minute. Notre estimation est considérée comme à  $t = 0$  s très précisément, mais elle néglige plusieurs isotopes à demi-vie très courtes, donc très actifs. Elle est donc nécessairement sous-estimée et pourtant elle surclasse les données disponibles qui sont plus vraisemblablement des mesures à  $t = 0 + \epsilon$ .

---

<sup>12</sup>Nous rappelons aussi ici qu'il ne s'agit que d'un modèle temporaire d'estimation de la puissance résiduelle.

#### 4.2.2.2 Évolution générale hors coeur

À partir des résultats en sortie de coeur, nous avons fait évoluer les isotopes des tableaux 4.1 et 4.2 qui semblaient être en concentration suffisante pour contribuer dans le temps (exception faite du technetium 100, du cérium 143 et de l'euprium 152). Nous nous sommes intéressés à la variation de la puissance résiduelle par grappe sur les premières années suivant la sortie du coeur. Comme la puissance chute rapidement durant ce laps de temps, nous avons choisi de séparer les résultats en 3 graphiques différents afin de faciliter la lecture des données. D'autre part, comme nous l'avons expliqué précédemment, notre modèle de calcul est relativement limité, ainsi allons-nous nous contenter ici d'analyse qualitative de nos résultats, car aucun pourcentage ou autre rendement ne serait être assez pertinent pour être utilisé. La plupart du temps nous comparerons donc :

- Une courbe connue de variation de puissance en fonction du temps issu de la littérature
- La courbe d'évolution de la puissance résiduelle calculée directement par DRAGON et les modules EVO, EDC et EQV.
- La courbe représentant la puissance résiduelle obtenue par un calcul couplé dans DRAGON tel que précédemment, et sur tableur en ajoutant plusieurs isotopes considérés comme contribuant.

Le but, évidemment, étant de déterminer si l'ajout des isotopes qualifié de « *contribuant* » était ou non pertinent.

Pour les 50 premiers jours, nous avons tracé le graphique 4.7. Il permet de comparer les résultats avec les données issues d'Hydro-Québec.[Hydro Québec, 2004] Nous remarquons que notre calcul de départ sous DRAGON est très sous-estimé, alors qu'il est bien plus proche de la réalité lorsque nous y ajoutons les isotopes proposés. En fait, il est même surestimé, probablement à cause des limites présentées au sous-chapitre 4.2.1.1. Bien que cette modification prenne encore en considération la puissance emportée par les neutrinos, elle nous permet de confirmer l'importance de l'ajout d'isotopes

FIGURE 4.7 Comparaison de différents modèles de chaleur résiduelle sur les 50 jours suivants la sortie du cœur

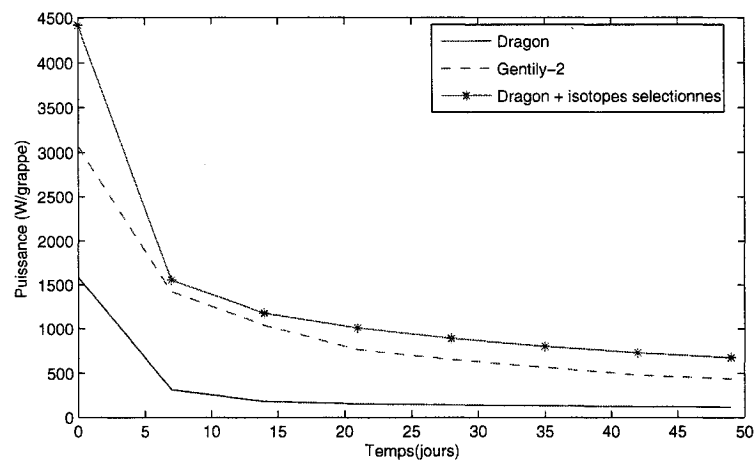


FIGURE 4.8 Comparaison de différents modèles de chaleur résiduelle sur les deux premières années suivant la sortie du cœur

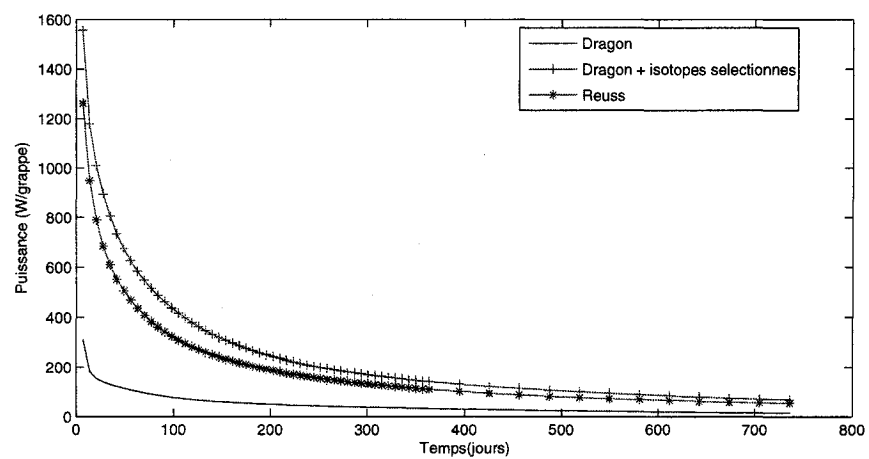
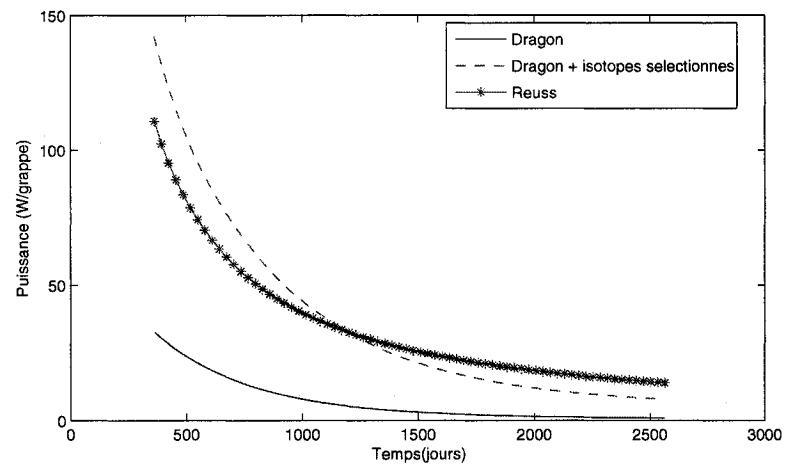


FIGURE 4.9 Comparaison de différents modèles de chaleur résiduelle de deux à sept ans suivant la sortie du cœur



supplémentaires dans les chaînes de calcul pour évaluer la puissance résiduelle de façon correcte.

Viens ensuite la période sur les 2 premières années (graphique 4.8) puis jusqu'à 7 ans (figure 4.9) ou l'on compare nos résultats de simulation à une méthode d'approximation tirée de la littérature<sup>13</sup>. Nous y confirmons jusqu'à 1300 jours (soit environ 3 ans et demi), la tendance précédente : à savoir une légère surestimation de notre modèle DRAGON enrichi des isotopes sélectionnés. Pourtant, au-delà de 1300 jours, notre calcul DRAGON est de nouveau sous-estimé, comme si nous avions oublié un isotope particulièrement contribuant décroissant durant cette période de temps. En fait, il pourrait s'agir d'un nouveau couple d'isotopes dont le précurseur aurait une demie vie aux alentours d'une vingtaine d'années (et ne commencerait réellement à décroître qu'au bout du tiers de cette demie vie soit 6 ou 7 ans) et dont le fils serait assez actif (une demie vie de l'ordre d' 1 jour maximum). Ce type de couple ne semble pas exister dans les isotopes généralement suivis dans les bibliothèques choisies. L'erreur est donc probablement autre part :

- Dans notre modélisation.
- Dans le modèle simplifié de WAY et WIGNER[Reuss, 2003a]<sup>14</sup>
- *etc...*

Enfin, vient la courbe 4.10, qui nous montre de nouveau le rapprochement entre le modelé mathématique et notre évaluation algorithmique, avec une certaine différence au-delà de 30 ans.[Reuss, 2003b]

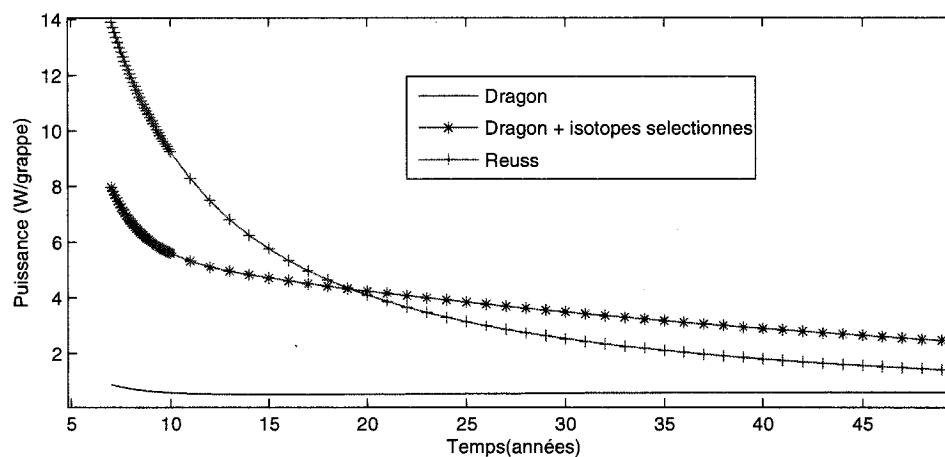
Pour clarifier cela, au vu du trop grand nombre de variables, il nous faut d'abord affiner notre modèle en l'implantant dans DRAGON par exemple, et minimiser l'impact des limites évoquées à la section 4.2.1.

---

<sup>13</sup>Nous avons été confrontés à la difficulté d'obtenir des données de comparaison au-delà de 2 ans. Seul le modèle proposé par M.REUSS était alors à notre disposition. Or celui-ci, aux dires de son auteur lui-même, est limité, car extrêmement simplifié.[Reuss, 2003b]

<sup>14</sup>Qui reste, elle aussi, une approximation

FIGURE 4.10 Comparaison de différents modèles de chaleur résiduelle de sept à cinquante ans suivant la sortie du cœur



#### 4.2.3 Conclusion partielle

Dans cette section, nous avons remarqué qu'il était primordial de suivre un nombre plus grand d'isotopes que ceux considérés par la bibliothèque de départ. Nous avons également remarqué que la puissance résiduelle entre 7 et 50 ans évaluée par notre modèle est très éloignée de celle proposée par les modèles de la littérature. Mais est-ce dû à notre calcul ou aux imperfections des dits modèles. C'est à l'issue de l'implantation complète de nos données et face à un calcul plus précis des contributions isotopiques que nous pourrions conclure sur cette remarque. Ce point sera, en tout cas, à surveiller.

À la suite de ces remarques, nous avons travaillé sur la possibilité d'étendre la chaîne de décroissance utilisée par DRAGON pour son calcul d'évolution, tout ce travail ainsi que celui de collecte de données à intégrer est présenté à la section suivante.

### 4.3 Chaîne, données et calcul sous DRAGON

Nous avons dû traiter un certain nombre de données d'énergie de décroissance pour évaluer correctement la puissance résiduelle. Et notamment la non-contribution contribution de l'énergie emportée par les neutrinos des décroissance  $\beta$  à la puissance résiduelle déposée dans l'environnement. Mais présentons tout d'abord la méthode utilisée pour détailler les nouvelles chaînes de décroissances dans DRAGON.

#### 4.3.1 La filiation isotopique

##### 4.3.1.1 Construction d'une nouvelle chaîne isotopique

Plusieurs précautions sont à respecter pour ce travail, la principale des contraintes étant de ne pas déséquilibrer la neutronique du cœur car nous désirons simplement ajouter des isotopes ayant un impact nul sur ce plan. Cependant, l'ajout d'isotopes ou d'embranchement peut avoir un impact sur les concentrations des isotopes déjà présents qui n'avaient comme mode de disparition que l'absorption neutronique. C'est le cas, par exemple, du cérium 144, qui se transformait par absorption neutronique puis 2 décroissances  $\beta$ -<sup>15</sup> en néodyme 145. Comme nous avons rajouté le praseodyme 144, son fils par décroissance directe, nous avons introduit un déséquilibre dans la neutronique du réacteur. C'est pour cela que nous avons dû également rajouter une probabilité d'absorption neutronique puis décroissance  $\beta$ - selon le même rendement utilisé par la bibliothèque de départ pour le cérium 145. Ainsi, la production de praseodyme 144 n'équivaut, d'un point de vue neutronique, qu'à la création d'un isotope jumeau du cérium 144, et l'équilibre est conservé.

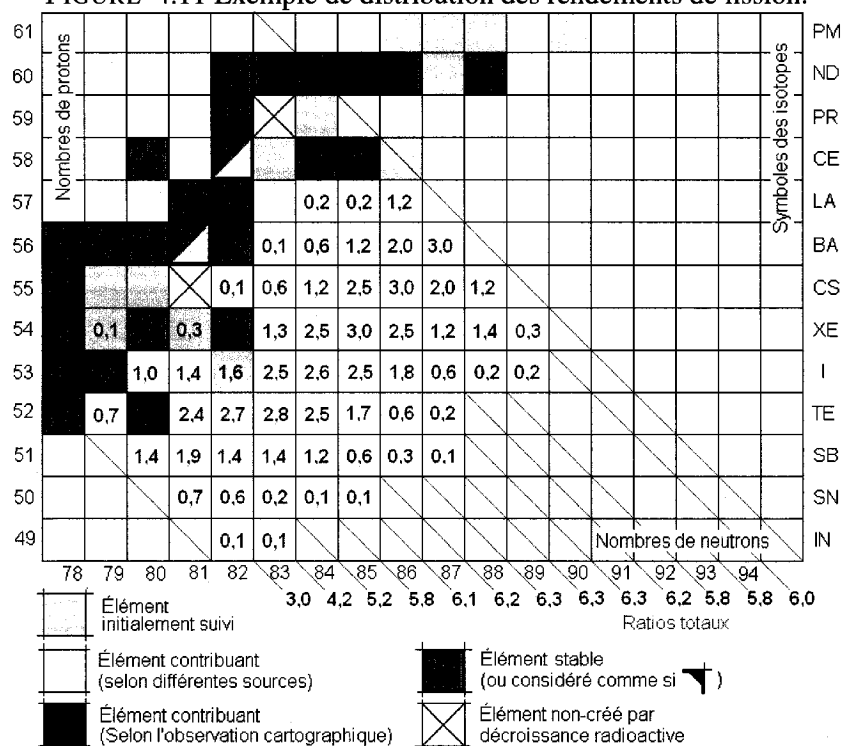
Il a fallu aussi modifier les valeurs de rendements de fission, notamment lorsque nous allongions les chaînes de décroissance vers les isotopes ayant un haut nombre de

---

<sup>15</sup>Noté *NG* par raccourci dans la chaîne de décroissance initiale, puisque ni le cérium 145 ni le praseodyme 145 n'y sont représenté.

neutrons. Nous rappelons en effet que la fission produit forcément des isotopes ayant

FIGURE 4.11 Exemple de distribution des rendements de fission.



un excédent neutronique, c'est à dire, des isotopes à droite de la vallée de stabilité<sup>16</sup>. Lorsque la bibliothèque ignore ces isotopes, en raison de leur demi-vie trop faible par exemple, elle donne donc au premier isotope de la chaîne la somme des valeurs de rendements de fissions. Mais si l'on ajoute des isotopes le long de cette chaîne, il faut nécessairement modifier cette valeur.

Dans la figure 4.11, nous avons représenté la répartition des rendements de fissions pour les chaînes isotopiques de nombres de masse compris entre 131 et 143 sur notre cartographie isotopique.[Wiles, 2002] Nous remarquons que la plupart des produits de

<sup>16</sup>Cela à été détaillé en section 4.1.2



fission réellement générés le sont bien à droite de la vallée de stabilité et pour des isotopes à très faible durée de vie. Aussi avons-nous choisi de donner à chaque isotope que nous considérons comme commençant la chaîne, la valeur de rendement de fission équivalent à la somme de ceux de la chaîne en question. Aux autres isotopes, nous avons simplement assigné la valeur 0. Ce choix peut générer une erreur dans certains cas tel que celui de la chaîne 132. En effet, tel qu'illustré à la figure 4.11 l'iode 132 est produit avec un rendement de 0,1 et le tellure 131 l'est avec un rendement de 0,7. Sachant que le rendement de production de la chaîne est de 3,0 nous devrions attribuer le rendement de 0,1 à l'un et 2,9 ( $3,0 - 0,1 = 2,9$ ) à l'autre. [Wiles, 2002] Or, la méthode d'évaluation des rendements de fissions présentée précédemment nous fait plutôt choisir 0,0 pour le premier et 3,0 pour le second.

Nous risquons donc d'introduire une erreur d'évaluation conséquente à ce niveau. Cependant, nous ne pouvons faire autrement, et ce parce que :

- La valeur de 3,0 présentée ici est fausse, car elle est issue d'une représentation lissée de la courbe à deux bosses des rendements de fissions (contrairement à celle représentée à la figure 4.2), elle est en réalité plus proche de 4,31 pour les neutrons thermiques.
- Ces valeurs de rendement de fission sont, de toute manière, dépendantes de l'énergie du neutron incident. Nous ne connaissons que celle pour les neutrons lents.
- Nous ne connaissons pas la répartition des rendements de fissions selon les isotopes de la chaîne au-delà des celles représentées à la figure 4.11.

Nous savons donc qu'une incertitude est introduite par ce choix de l'évaluation des rendements de fission. Mais :

- Les fissions dans un CANDU-6 sont, en général, induites par des neutrons thermiques
- Les valeurs que nous avons considérées pour les rendements sont réelles, et non issues d'une moyenne quelconque
- Seules certaines chaînes sont concernées par ce problème : sur la figure 4.11, c'est le cas de la chaîne 132 mais pas 140 par exemple.

- L'erreur d'évaluation pour les chaînes concernée a peu de chance de dépasser 4% (0,1 par rapport à 3,0 dans notre exemple, qui est forcément dans la fourchette haute puisque son rendement de fission total est faible, donc sa différence est forte)

Ainsi, nous avons décidé de conserver cette méthode d'évaluation. Les rendements de fissions utilisés sont ceux déjà disponibles dans DRAGON lorsque nous avons allongé des chaînes isotopiques en nous éloignant de la vallée de stabilité comme pour la chaîne<sup>95</sup> par exemple en donnant le rendement de chaîne alors disponible au premier maillon, père par décroissance de tous les isotopes à sa succession<sup>17</sup>. Dans le cas de nouvelles chaînes isotopiques, nous avons choisi d'utiliser les rendements de fission pour les neutrons neutroniques.[Nordborg, 2003]

Une étude plus approfondie des chaînes de décroissance ne pourra cependant se contenter de cette méthode d'évaluation. Elle devra alors effectuer une évaluation statistique précise des ces coefficients pour en connaître la valeur moyenne, les écarts types et ainsi être en mesure d'évaluer la probabilité d'erreur introduite par cette approximation. Ce travail devra notamment effectué si l'on désire utiliser notre modèle pour calculer la puissance résiduelle en cœur et connaître la chaleur dégagée par les produits de fission lors du fonctionnement par exemple. Il sera alors nécessaire d'allonger encore les chaînes de décroissances et de considérer aussi les isotopes de faible demie-vies (quelques secondes voir millisecondes) puis évaluer avec précision la répartition des rendements de fission sur chaque chaîne.

Le cas des actinides est légèrement différent : la plupart des chaînes étaient déliées, c'est-à-dire que les isotopes étaient bien présents, mais que la notion de filiation n'était pas considérée tellement la demie-vie était importante. Nous avons donc dû rajouter ces liens, sans pour autant prendre le risque de déséquilibrer le bilan neutronique<sup>18</sup>. Cependant, lesdites demie-vies étant tellement importantes, ces modifications sont sans effet

<sup>17</sup>Les rendements de fission du molybdène 95 ont été passés à 0 dans la nouvelle chaîne et transférés à son grand-père, le zirconium 95. Voir l'annexe IV pour le détail complet des modifications des chaînes de décroissances.

<sup>18</sup>La plupart des actinides ont des sections efficaces d'absorptions importantes.

sur les concentrations des actinides en cœur, donc sans problème pour notre calcul sous DRAGON.

#### 4.3.1.2 Intégration de la chaîne

Désormais, grâce à l'aide précieuse de M. Marleau, il est possible d'entrer directement notre chaîne de décroissance dans DRAGON lors de l'appel du module LIB pour de la création de la librairie et des mixtures. Nous utilisons les mots clefs PDEPLCH et DEPL pour signifier qu'une modification de la chaîne de décroissance est proposée tout en continuant d'utiliser les autres données disponibles dans la bibliothèque, telles que les sections efficaces. Voici un exemple de l'appel du module lors de la création de la microlibrairie.

```
MicLib___:=_LIB:___:
__EDIT_50
__NMIX_28__CTRA_WIMS
__PDEPLCH__DEPL_____98
CHAIN
'AM243' _____1_____NG
_____DECAY____2.976300E-04_____FISSION____2.145877E+02
_____FROM
_____NG_____1.000000E+00_____ 'PU242'
_____NG_____1.000000E+00_____ 'AM242M'
'AM242M' _____2_____NG
_____DECAY____1.445100E-02_____FISSION____2.145514E+02
_____FROM
_____NG_____1.105000E-01_____ 'AM241'
'AM241' _____3_____NG
_____DECAY____5.082100E-03_____FISSION____2.144768E+02
_____FROM
_____DECAY____1.000000E+00_____ 'PU241'
...
ENDCHAIN
```

Vous trouverez en annexe IV, le descriptif complet du fichier d'entrée de création des mixtures utilisées pour les grappes CANFLEX dans notre étude.

### 4.3.2 Les énergies de décroissances

Nous avons jusqu'ici travaillé à partir des *Q-values*, c'est à dire à la différence de masses entre l'atome de départ et son fils. Mais dans le chapitre 1.3.1.4 nous avons présenté les limites d'un tel modèle qui prend en compte des énergies qui ne peuvent être déposées dans la matière environnant le combustible (celle emportée par les neutrinos notamment), ce qui nous avait poussé à définir la puissance résiduelle utile comme étant celle que nous voulions étudier et comparer avec d'autres résultats.

#### 4.3.2.1 Collecte de données

Il nous a donc fallu collecter les détails des énergies de décroissance et modifier les modules de calcul pour qu'ils acceptent et traitent différentes valeurs d'énergie. Pour ce faire, nous nous sommes basé sur les données de la table détaillée de MM. BROWNE et FIRESTONE.[Browne et Firestone, 1986] Ceci nous a permis de remarquer, qu'effectivement, les neutrinos emportent avec eux jusqu'à  $\frac{2}{3}$  de l'énergie lors d'une décroissance  $\beta$ . Ainsi, utilisé les valeurs de *Q-values* en lieu et place du détail des énergies peut sur estimer notre puissance résiduelle de façon très importante, notamment si les décroissances  $\beta$  sont en grand nombre dans le combustible étudié. Ce point sera détaillé au chapitre suivant, lorsque nous commenterons les résultats issus de nos calculs effectués sous DRAGON avec ou sans cette contribution des neutrinos.

#### 4.3.2.2 Remarques sur les embranchements lors de décroissances

Il faut savoir que les énergies sont en général pondérées par les valeurs de probabilité de production au niveau considéré. Aussi les valeurs entrées dans EQV ne sont-elles pas les valeurs réelles des énergies de décroissance, mais leurs valeurs moyennes, en vertu de la loi des grands nombres. Il est donc possible qu'un rayonnement hautement ionisant soit émis par un des atomes, mais s'il l'est avec une faible probabilité, la notion

de dangerosité sera gommée dès l'entrée des valeurs d'énergies de décroissance dans le programme.

TABLEAU 4.5 Énergie de rayonnement gamma ( $\gamma$ ) pour le  $^{133}_{54}\text{Xe}$

Énergie rayonnement ( <i>keV</i> )	Probabilité (%)	Énergie rayonnement ( <i>keV</i> )	Probabilité (%)
3,795	0,0920	4,142	0,0420
4,285	2,5000	4,732	2,3000
5,362	0,3000	30,625	14,1000
30,973	26,0000	34,967	7,1000
36,006	1,7400	76,612	0,2390
80,989	37,0000	160,601	0,0450
223,24	0,0001	302,851	0,0044
383,841	0,0021		
total :	91,4647		
Moyenne	45,96		

Prenons par exemple le xénon 133, dont les différentes énergies d'émission de photons sont répertoriées au tableau 4.5. D'après ces valeurs, le maximum d'énergies émises par rayonnement gamma par cet isotope est de presque 385 *keV*, mais la probabilité d'un tel événement n'est que de 0,0021%. Aussi la moyenne n'est-elle que de 45,96 *keV*<sup>19</sup>.

De la même façon, lorsqu'il y a embranchement, l'énergie développée par la décroissance radioactive est multipliée par la probabilité de la décroissance. Ainsi, bien que le bismuth 212 émet des rayonnements  $\beta^-$  de 16,38 *keV* en moyenne et des particules  $\alpha$  de 6,0557 *MeV*, les valeurs entrées dans le fichier DV et traitées par EQV ne sont respectivement que de 10,5 *keV* et 2,174 *MeV* pour tenir compte des proportions. Il se peut qu'un isotope ait un branchement de décroissance important selon les tables, mais que cette spécificité ne soit pas prise en compte par DRAGON. Nous avons donc pensé à la programmation d'une option supplémentaire dans EQV qui demandait à l'utilisateur de

<sup>19</sup>Le total des probabilités n'est pas de 100% car il arrive qu'aucun rayonnement ne soit émis. La moyenne est néanmoins effectuée par rapport à 100%, en considérant que les 9% d'événements « *pas d'émission de rayonnement* » équivalent à l'émission de rayonnement de 0 *keV*

rentrer un indicateur s'il savait que l'isotope de l'embranchement n'était pas présent dans la chaîne de décroissance. Si tel avait été le cas, et que l'utilisateur demandait un calcul total des énergies de décroissance, nous aurions effectué une moyenne des énergies de décroissance sur l'isotope en question (en utilisant les valeurs de rendement demandées également dans l'entrée du fichier DV<sup>20</sup>). Alors que si l'utilisateur désirait simplement un mode de décroissance, les données seraient prises brutes. Le manque de temps nous a cependant empêché de finir de développer cette option, qui est d'ailleurs inutile pour notre application, car aucun branchement ne manque dans notre chaîne de décroissance.

Les valeurs de production d'énergie depuis les émissions gamma ont également été implantées et utilisées pour nos calculs. Celles correspondant à l'énergie emportée par les neutrinos ont été évaluées en soustrayant la somme de l'ensemble des énergie emportées par les particules à la valeur de différence de masse pour chacun des isotopes. L'ensemble des énergies de décroissance que nous avons utilisé dans notre étude est répertorié au tableau IV.1 en annexe IV.1.

#### 4.4 Conclusion

À l'issue de ce travail de compréhension, nous avons collecté et traité toutes les données nécessaires à un calcul précis de la puissance résiduelle. Nous connaissons les limites de notre modèle, mais avons également une première idée des isotopes à suivre lors du refroidissement de la grappe hors du cœur.

Il nous faut maintenant exploiter nos outils ainsi préparés et validés pour étudier en détail les grappes de combustibles en sortie de cœur

---

<sup>20</sup>voir l'annexe III.1.2 pour plus de précisions

## CHAPITRE 5

### L'ÉTUDE DE CAS TYPES DE PUISSANCE RÉSIDUELLE

Une fois nos concepts étudiés, nos outils programmés, nos hypothèses de travail fixées et nos données vérifiées, nous nous sommes intéressés à différents cas types, suivant l'évolution de la puissance résiduelle *utile*<sup>1</sup> de différentes grappes de combustibles. Dans ce chapitre, nous étudierons donc la puissance résiduelle de différents éléments de combustible, sa quantité, la façon dont elle est produite et comment elle évolue dans le temps.

#### 5.1 Évolution globale de la puissance résiduelle

Ainsi, dans un premier temps, nous allons analyser la puissance résiduelle d'une grappe de combustible classique à 37 crayons issue d'un réacteur CANDU-6 pour pouvoir la comparer avec différents résultats de référence. L'idée est de présenter les ordres de grandeur auxquels nous serons confrontés durant la suite du chapitre, mais aussi de vérifier que nos estimations sont comparables à des données reconnues et utilisées par l'industrie nucléaire. Il faut savoir qu'aucune données expérimentale n'est disponible. Aussi la plupart des estimations présentées ici seront issue de calculs similaires au nôtre, mais éprouvés. Puis nous quantifierons, les contributions des différentes types de désintégrations (tels que les rayonnements  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$  ou autres).

##### 5.1.1 Allure générale

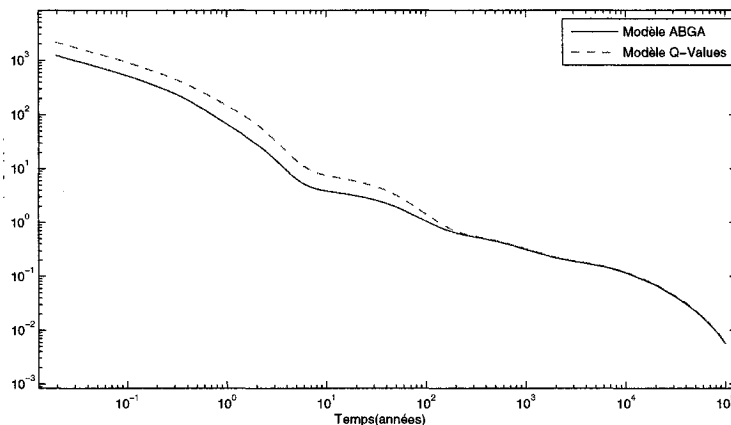
La courbe 5.1 donne les profils de l'énergie globale dégagées par la grappe de combustible en échelle doublement logarithmique. Nous y présentons les 2 résultats de nos

---

<sup>1</sup>Nous rappelons que la puissances résiduelle utile est celle libérée par le combustible et déposé dans l'environnement. Elle oublie donc la part de puissance emportée par les neutrinos.

calculs en utilisant les énergies combinées des décroissances  $\alpha, \beta$  et  $\gamma$  ou celle des Q-Values. Nous remarquons la forte différence qui existe entre les évaluations utilisant les

FIGURE 5.1 Évolution générale de la puissance résiduelle après la sortie du cœur selon nos calculs



énergies de Q-values (Courbe « *Modèle Q-value* ») ou la combinaison des énergies  $\alpha, \beta, \gamma$  et autres (Courbe « *Modèle ABGA* »). Ceci est dû à la présence de la contribution des énergies des neutrinos dans le premier cas.

Nous savons que l'énergie emportée par ces neutrinos perdure et ne peut pas être mesurée. Cette contribution est donc inutile pour notre modélisation, bien qu'elle puisse représenter une sur-évaluation allant jusqu'à plus de 100% si on la considère. Ainsi, dans la suite notre thèse, nous la mettrons de côté, pour ne considérer que les énergies relâchées par le combustible qui sont mesurables et ont un impact sur son environnement. Il sera donc sous-entendu que les résultats de nos calculs maintenant présentés feront appel uniquement à l'évaluation d'énergies combinées des décroissances  $\alpha, \beta, \gamma$  et autres (*Modèle ABGA*), sans les neutrinos.

Si nous nous intéressons maintenant à l'étude de l'allure de la courbe conservée (*Modèle ABGA*), nous pouvons retrouver plusieurs notions classiques en gestion des



déchets :

- La puissance diminue très rapidement les premières années suivants la sortie du cœur. Ainsi passe-t-elle de 3 ou 4 milles watts par grappe, à seulement une centaine en moins d'un an.
- Une inflexion de la courbe est très prononcée autour de 6 ans après la sortie du coeur. Après avoir fortement décru, la puissance se stabilise autour d'environ 4 ou 5 watts par grappe. Ce laps de temps (de 6 à 10 ans, est généralement celui considéré comme idéal pour sortir les grappes de la piscine pour un stockage à sec. En effet, la puissance générée n'est plus suffisante pour altérer les grappes et attendre encore ne permet pas de diminuer de façon notable la puissance (avant la seconde inflexion de la courbe décrite ci-après)
- Une seconde inflexion de la courbe se produit aux alentours de 55 ans, elle quitte alors le palier de puissance à environ 3 watts par grappe et diminue de façon plus monotone. Ce second point d'inflexion est souvent cité comme le moment idéal pour déplacer les déchets vers un site de stockage centralisé.

L'observation de la courbe 5.5, proposée à la section suivante, permet de confirmer cette notion de point d'inflexion. Bien que cette courbe concerne l'activité et donc que les ordres de grandeur ne sont pas comparables, le moment où la courbe change de pente dépend des demie-vies, notion commune à la fois à l'activité et le calcul de puissance résiduelle. Ainsi, nous retrouvons parfaitement les deux points d'inflexion.

Mais comment expliquer cette allure ? Les points d'inflexion observés sont-ils fixes ou dépendent-ils de la puissance à laquelle la grappe a été brûlée ? C'est ce que nous tenterons d'expliquer par la suite.

### 5.1.2 Comparaison

Nous avons comparé la puissance calculée par notre simulation pour une grappe de 37 crayons avec celle obtenue par mesures calorimétriques sur du combustible irradié à la centrale de Gentilly-2 (Québec).[Hydro Québec, 2004] La courbe 5.2 présente ces

résultats et la différence illustrée sur la figure 5.3 nous permet de visualiser la différence qui existe entre ces deux séries de valeurs. Cette différence est prise en prenant en référence les données de comparaisons et non nos calculs<sup>2</sup>. Il en est de même pour toutes les autres différences calculées par la suite.

FIGURE 5.2 Puissance résiduelle selon nos calcul et des mesures sur les 50 premiers jours

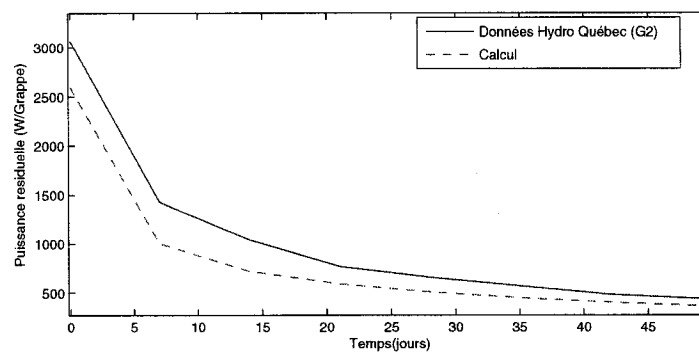
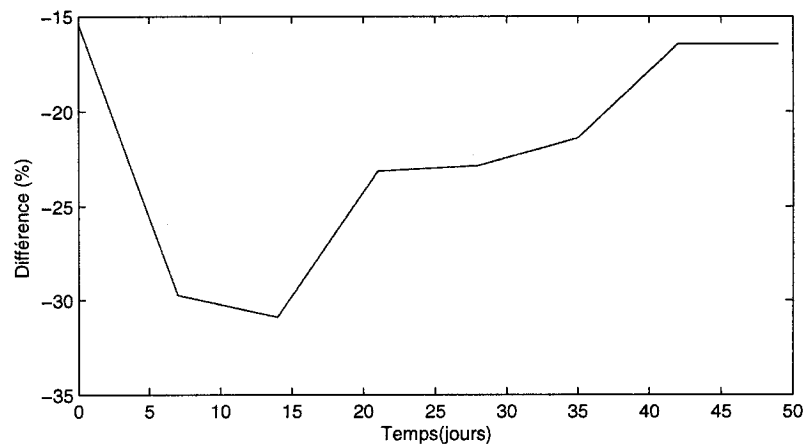


FIGURE 5.3 Différence entre nos calculs et des mesures sur les 50 premiers jours



<sup>2</sup>  $\frac{2 \text{ (Nos calculs)} - (\text{Données de comparaisons})}{\text{Données de comparaisons}}$

Nous remarquons que notre calcul sous-estime la puissance résiduelle de 15 à 20 pourcents sur les 50 premiers jours. Nous considérons que l'écart de plus de 30 pourcents, aux alentours de 10 jours et dû à une anomalie de mesure, car relatif à un seul point. Dans ces périodes de temps, la variation de puissance résiduelle est si forte qu'une erreur de temps dans les mesures provoque un décalage important de résultat. La différence de 15-20% peut s'expliquer de plusieurs manières, parmi lesquelles figurent les erreurs de mesures des données de comparaisons et celle de calcul et/ou de modélisation de nos résultats.

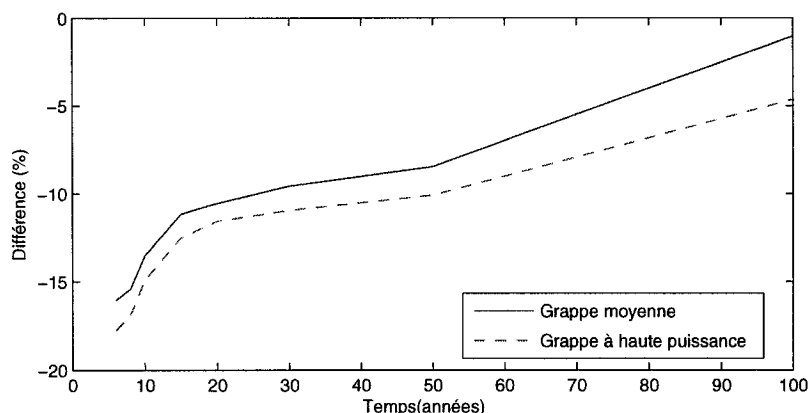
Comme il s'agit de mesures effectuées en centrale, nous nous devons de les considérer comme correctes. Cependant, beaucoup d'incertitudes quant à la manière dont elles ont été effectuées persistent. En effet, nous ne connaissons absolument pas les méthodes expérimentales. Or la puissance résiduelle variant de façon très importante lors des tout premiers jours, un décalage de quelques heures entre l'instant de mesure (par rapport à sa sortie du cœur) et celui que nous avons simulé peut avoir présenté de fortes différences d'évaluation. Cependant, cet impact s'atténue avec le temps : la pente de la courbe de puissance résiduelle diminuant, un écart  $\Delta X$  ne correspond plus à un écart  $\Delta Y$  aussi important. S'il y a une erreur systématique et un décalage des points de mesure par rapport aux moments de calcul, ce dernier point pourrait expliquer que notre modèle semble se rapprocher des mesures avec le temps.

Nous ignorons également si la grappe considérée a été brûlée dans les mêmes conditions que celle de notre simulation. Même si cet impact s'avère minime, il vient s'ajouter à notre liste d'incertitudes. Notamment parce que nous avons démontré au chapitre 3 que les variations de puissance en cœur jouent essentiellement sur l'activité en sortie de cœur et donc, à priori, sur la puissance résiduelle des premiers jours ou années. De plus, comme nous avons longuement étudié les familles isotopiques et leurs contributions à la puissance résiduelle, nous savons que notre simulation ne peut être juste pour les temps très courts car nous avons ignoré volontairement les isotopes de durée de vie inférieure à une journée.

Pour permettre une comparaison plus poussée, nous avons utilisé des données issues de simulations sur lesquelles nous avons pu nous baser pour évaluer la précision de notre modèle sur le court et moyen terme. Les différences entre nos calculs et ces simulations pour deux niveaux de puissances sont présentés à la figure 5.4.

[Murugesan et Saroudis, 1989] Nous notons la réduction progressive de l'erreur avec le

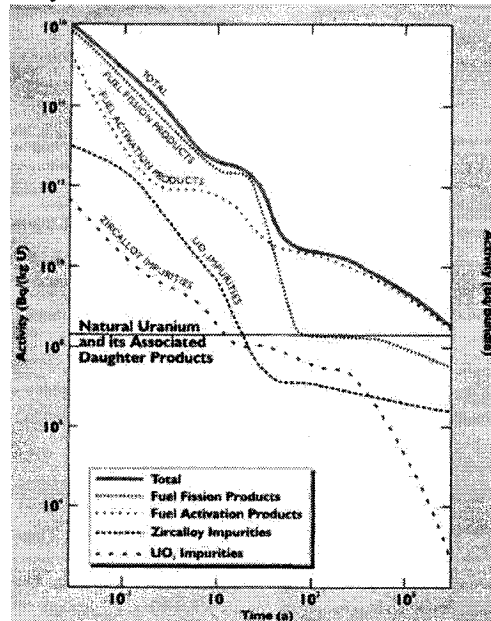
FIGURE 5.4 Différence entre nos calculs et une modélisation éprouvée



temps, qui passe en dessous de la barre des 5 pourcents aux delà de 60 ans.

L'ensemble des remarques précédemment citées restent valable, mais nous ne pouvons croire que d'autres produits de fission entrent en jeu et contribuent à la puissance résiduelle pour les quelques 10 pourcents manquants. Par contre, il est fort possible que plusieurs produits d'activations entrent en jeu, mais l'oxygène 17 ou le carbone 14 éventuellement créés par absorption neutronique dans la structure en zircaloy de la grappe n'ont pas des durées de vie permettant d'expliquer ce décalage (l'une est bien trop courte, l'autre trop longue). Il faudrait donc étudier précisément la composition atomique de la grappe (structure comprise) pour connaître les raisons de cette différence. Cette étude a, en partie, été réalisée dans l'ouvrage de Donald R. WILES ou nous avons trouvé un graphique rassemblant ces données que nous présentons à la figure 5.5.[Wiles, 2002] Nous y observons l'importance de l'activité des structures et surtout des impuretés conte-

FIGURE 5.5 Decay curve of the radionuclides in used fuel[Wiles, 2002]



nues dans la grappe de combustible, qui, bien que de 2 ordres de grandeurs inférieures à l'activité des produits de fissions (ceci peut donc expliquer environ 1% de l'erreur au maximum), est néanmoins présente notamment durant les 10 premières années suivant la sortie du cœur.

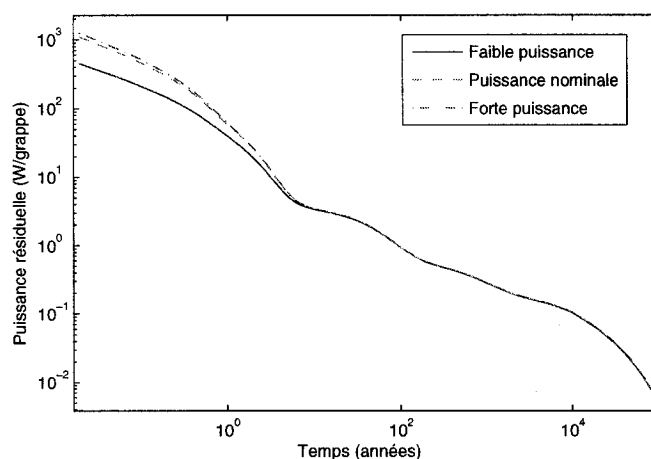
Ainsi, malgré tous nos efforts, nous n'avons pu comparer nos résultats à un cas réel, entièrement connu. Il s'agit là d'une limite de notre calcul dont nous sommes conscients, et dont nous avons cherché à nous affranchir au maximum lors des études complètes de la bibliothèque présentées au chapitre 4.

#### 5.1.2.1 Influence de la puissance en cœur : bilan.

Afin de réorganiser nos idées, nous avons également voulu confirmer les résultats obtenus au chapitre 3. Ainsi avons-nous calculé la puissance résiduelle pour plusieurs

grappes de 37 crayons brûlées aux niveaux de puissance que nous avons alors utilisés pour l'étude complète du problème<sup>3</sup>. Le graphique 5.6 qui présente ces valeurs durant les premières années, est à rapprocher directement du graphique 3.23 qui présentait l'activité. L'ensemble de nos résultats d'alors, concernant l'influence de quelques isotopes essentiellement sur les 50 premières années, se trouve ici confirmé.

FIGURE 5.6 Évolution de la puissance résiduelle suivant les niveaux de combustion selon nos calculs.

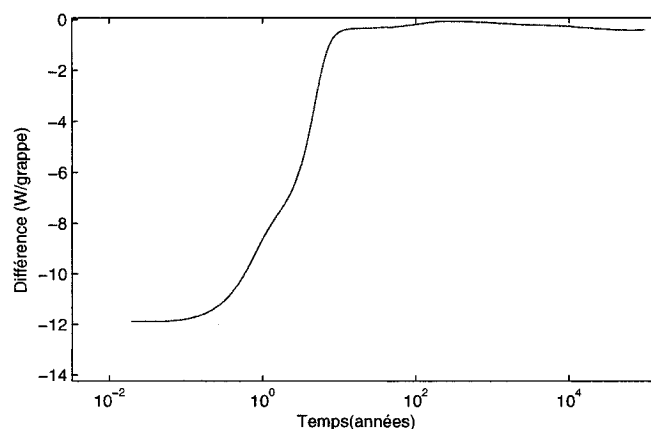


Sur les toutes premières années, nous notons une différence de puissance pouvant aller jusqu'à 15% de puissance résiduelle supplémentaire pour le cas de la grappe brûlée à forte puissance, et -60% pour celle brûlée à faible puissance. Ce résultat nous permet d'appuyer notre hypothèse que la méconnaissance de la puissance réelle à laquelle la grappe a été brûlée en cœur pour les mesures ou données de comparaisons utilisées vis-à-vis de notre modèle puisse très bien être responsable d'une partie des différences d'estimation de celui-ci. D'autre part, même si l'impact de la puissance en cœur se prolonge jusqu'à 50 ans après la sortie du combustible, il devient négligeable pour les grappes

<sup>3</sup>Les niveaux les plus représentatifs des variations avaient été : le niveau de puissance nominale ( $31,97 \frac{Mw}{t}$ , noté *Norm*), un niveau élevé ( $37,00 \frac{Mw}{t}$ , noté 03) et un niveau faible ( $12,00 \frac{Mw}{t}$ , noté 02).

brûlées à forte puissance au-delà de 6 ans (il ne représente alors plus qu'une différence de 0,7% par rapport au cas nominal)<sup>4</sup>. Ceci favorise la manipulation des grappes après cette période qui correspond à la sortie de la piscine de stockage. Car, même si nous ne connaissons que la puissance résiduelle de la grappe nominale, nous pouvons être assuré, qu'au maximum, les grappes manipulées dégagerons seulement 1% de puissance en plus.

FIGURE 5.7 Différence d'estimation entre la puissance résiduelle d'une grappe statistiquement représentative du cœur et celle du cas nominal selon nos calculs.



Pour aller plus loin, nous avons également repris l'étude statistique présentée à la section 3.4 et comparé l'énergie moyenne développée par le cœur au complet en refroidissement (ramenée à une grappe) et la puissance résiduelle générée par la grappe brûlée à puissance nominale. Ces résultats sont présentés à la figure 5.7. Nous y voyons que la puissance de la grappe *normale* (cas statistique) est inférieure à celle du cas nominal. En fait, nous retrouvons l'allure que la figure 5.6 attribuait aux grappes de faible puissance, car le cœur que nous avons considéré dans notre étude statistique en possédait en plus grandes proportions. Mais la différence maximale présentée à la figure 5.7 n'est

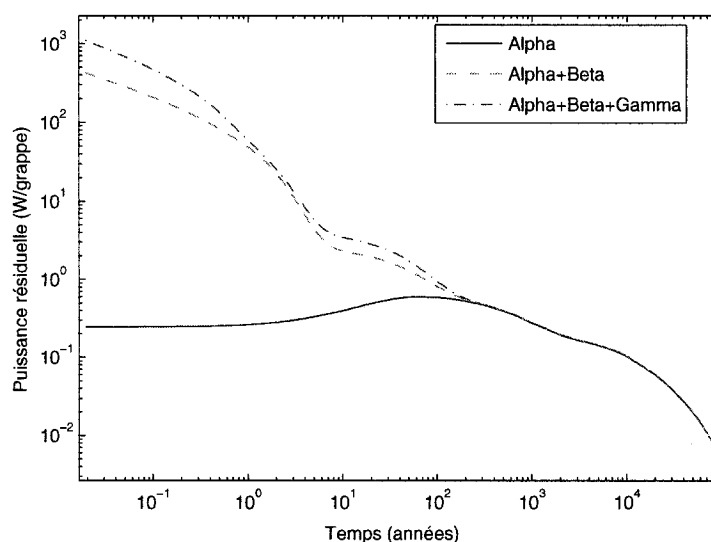
<sup>4</sup>La différence est alors encore de -6% pour les grappes brûlées à faible puissance, et ne passera sous la barre des 1% qu'au-delà des 50 ans.

plus que de 10% et, bien que maintenue à ce niveau plus longtemps, elle chute à son tour pour retrouver des valeurs très proches du cas nominal aux alentours de 6 ou 7 ans.

### 5.1.3 Source de production d'énergie

Nous nous sommes ensuite intéressés à la manière dont la puissance résiduelle était produite : depuis quels types de rayonnements et en quelles proportions. La courbe 5.8 illustre ces contributions pour une grappe CANFLEX à 43 crayons .

FIGURE 5.8 Détail des contributions en puissance résiduelle selon les types de rayonnement.



Il s'agit d'un graphique cumulé en échelle logarithmique. À titre d'information, nous avons laissé la contribution des neutrinos, bien que celle-ci ne soit pas déposée dans l'environnement direct de la grappe. La courbe 5.1 est ainsi décomposée en différentes sous-courbes parmi lesquels celle correspondant à la contribution  $\beta$  qui semble être la principale composante durant les 150 premières années : C'est elle qui génère les deux points



d'inflexion évoqués plus haut, c'est donc parmi les émetteurs  $\beta$  qu'il faudra chercher les responsables de cette tendance. Nous remarquons également que les émissions  $\beta$  cessent quasiment au-delà de ces mêmes 150 ans, les émissions  $\alpha$ , jusqu'alors réduites, prennent le dessus. Puisque nous savons que les émissions  $\beta$  sont essentiellement générées par des produits de fission et les  $\alpha$  par des actinides<sup>5</sup>, nous comprenons le rôle joué, à long terme, par les atomes lourds dans les déchets nucléaires et l'intérêt que peut présenter la séparation de ses éléments dans le cadre d'un retraitement.

La contribution en émissions  $\gamma$  est plus complexe. Elle semble en effet être répartie sur deux périodes bien distinctes. Cette *illusion graphique* est en fait due au comportement de la puissance  $\gamma$  : en fait, entre 2 et 60 ans, la production  $\gamma$  est quasiment constante. Ainsi, la proportion en  $\gamma$ , d'abord handicapée par la forte chute de sa contribution à la puissance globale plus précoce que celle des  $\beta$ , va donc reprendre de l'importance lorsque ces mêmes émissions  $\beta$  vont diminuer à leur tour, c'est à dire au-delà de 6 ans.

Le rôle des  $\alpha$  est étonnant. Il ne ressemble en rien à celui présenté sur la figure 5.5 sous l'appellation *activation product*. En fait, la notion de « produit d'activation » rassemble essentiellement les actinides formés par activation neutronique de l'uranium, or la plupart de ces actinides sont des émetteurs  $\alpha$ , à l'exception des américium 242, neptunium 238, neptunium 239 et plutonium 241 (quelques jours de demie-vie pour les neptunium 238, neptunium 239 et plutonium 241, environ 14 ans pour le plutonium 241) dans la bibliothèque étendue que nous utilisons pour nos calculs. La différence d'allure entre la courbe des produits d'activation sur la figure 5.5 et celle de la contribution des  $\alpha$  sur la figure 5.8 s'explique facilement car le plutonium 241 est compté parmi les produits d'activation dans le premier cas.

Les curium 242 (162,5 jours), curium 243 (17,6 ans) et curium 244 (32 ans) sont 3 émetteurs  $\alpha$  puissants que nous n'avons pas suivis dans notre calcul. Le nombre d'absorptions neutroniques et de décroissances qu'il faut effectuer pour aboutir à leur création implique une concentration finale très faible, notamment pour les grappes ayant

---

<sup>5</sup>Nommés « *activation product* » sur la figure 5.5

séjourné peu de temps en coeur. Mais ils sont quelquefois cités comme *isotopes à suivre* dans la littérature. Un nouvel axe de recherche pourrait être de tenter d'évaluer leur concentration, mais ce travail risque d'être délicat, car il risquerait de déséquilibrer le bilan neutronique. C'est pourquoi nous avons choisi d'ignorer ces isotopes. Nous rappelons que l'ensemble des modifications que nous avons proposées dans les chaînes de désintégrations n'a pas d'impact sur le bilan neutronique en réacteur puisque les isotopes ajoutés le sont sans sections efficaces. D'autre part, les liens créés vers des isotopes existants (par exemple, les liens entre actinides) n'ont pas de demie-vies suffisamment courtes pour influencer les concentrations des-dits isotopes sur le laps de temps d'un séjour en coeur.

## 5.2 Étude en détail par période de temps (court et moyen terme)

Afin d'expliquer ces résultats, nous avons utilisé les données de détail issues de nos calculs où chacune des concentrations des différents isotopes sont connues et triées en fonction du temps.

Pour cette étude, nous avons choisi de reprendre les conditions présentées au chapitre 2. Nous avons donc considéré les résultats issus du modèle ABGA appliqués à une grappe de type CANFLEX à l'uranium naturel brûlée à puissance nominale dans un réacteur CANDU-6. Nous avons en effet remarqué que les résultats et observations précédents obtenues avec des grappes à 37 crayons, était en grande partie transposables à cet autre type de combustible. Seules changent (légèrement) les ordres de grandeurs, mais le comportement général est préservé. En effet, si les conditions de combustions jouent sur les concentrations isotopiques, elles ne jouent pas réellement sur la nature des isotopes présents à la sortie et donc sur la manière dont évolue la puissance résiduelle.

Si nous nous devons de comparer nos résultats généraux en prenant les mêmes conditions expérimentales que nos sources, nous pouvons maintenant aller plus loin et nous intéresser au comportement détaillé des isotopes dans les grappes de nouvelle génération.

Pour rendre cette étude plus efficace, nous l'avons fragmenté selon différentes périodes de temps, choisies grâce à l'observation des courbes présentée précédemment et notamment selon la place des points d'inflexions. Cela nous a permis de comprendre quels isotopes, dans les listes d'ajouts notamment (tableau 4.1, 4.2 et 4.3), contribuaient le plus à la puissance résiduelle, et à quels moments. Évidemment, ce sont les premières années qui sont les plus complexes et qui voient la répartition des principales contributions la plus disparate. Avec le temps, le nombre d'acteurs diminuant, il devient plus facile d'isoler un ou deux acteurs principaux.

Par convention, nous parlerons de *très court terme* entre la sortie du coeur et 100 jours, de 100 jours à 7 ans nous évoquerons le *court terme*, de 7 à 60 ans le *moyen terme*, de 60 à 300 ans le *long terme*, et au-delà le *très long terme*.

### 5.2.1 Court et très court terme (7 premières années)

Au cours de ces toutes premières années, la puissance résiduelle évolue très rapidement, passant de presque  $4000 \frac{w}{grappe}$  en sortie de cœur à seulement 4 watts environ au moment de la sortie du stockage en piscine<sup>6</sup>, soit 3 ordres de grandeur.

Nous avons tracé à la figure 5.9, en échelle semi-logarithmique<sup>7</sup>, l'évolution de la contribution des 12 isotopes jouant un rôle prépondérant sur la première année de refroidissement. Nous remarquons l'importance des isotopes de lanthane 140, yttrium 91 et niobium 95 durant cette première année de refroidissement qui auront quasiment disparu au-delà. Ces isotopes sont d'ailleurs les seconds sur leur chaîne de décroissance respective (voir figure 1.1). Cela confirme bien notre hypothèse de départ, qui était de ne pas considérer les isotopes en particulier, mais bien comme étant intégrés dans une famille radioactive, pour connaître leurs influences. Les deux premiers isotopes nous avaient été suggérés par un livre relativement ancien, ce sont des grands classiques, de la

<sup>6</sup>Habituellement effectué après 6 années.

<sup>7</sup>L'axe des temps, seul, étant logarithmique

FIGURE 5.9 Contribution en puissance des différents isotopes durant l'année suivant la sortie du cœur

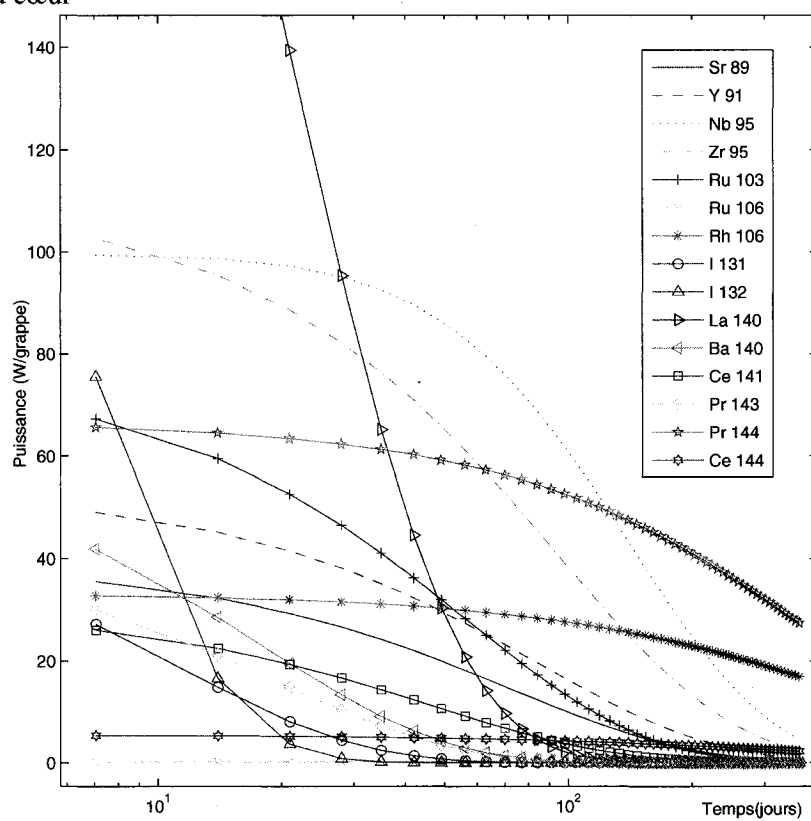
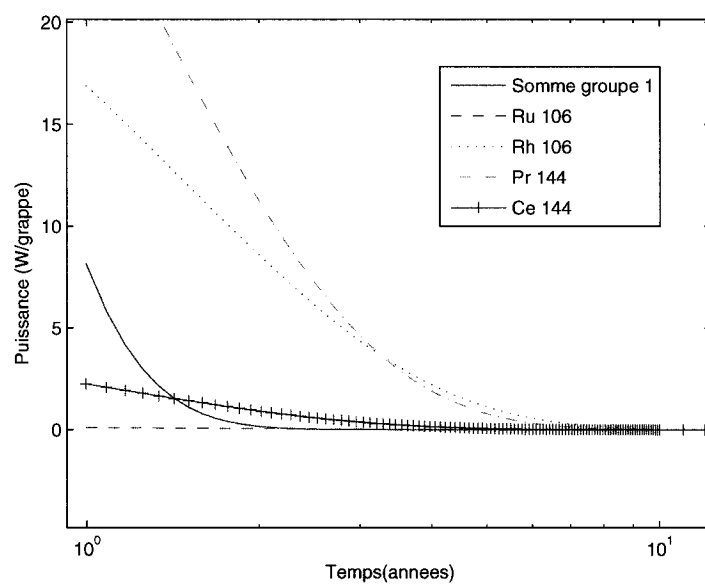


FIGURE 5.10 Évolution de la contribution en puissance des différents isotopes à court terme



décroissance radioactive.[Etherington, 1958] Par contre, le niobium 95 et son précurseur le zirconium 95 sont plus discrets et viennent de la bibliothèque utilisée par ORIGEN-S.[Gauld et al., 1995] Leur contribution n'est pour autant pas négligeable. Le barium 140 est le précurseur du lanthane 140, comme l'activité de ce couple est limitée aux 70 premiers jours, l'activité du précurseur, même si elle n'est pas à la hauteur de celle du fils, est non négligeable. Et donc, comme corollaire, sa contribution à la puissance résiduelle non plus. Nous prenons pour convention de nommer *groupe 1* cet ensemble d'isotopes qui représente la majeure partie de l'émission de puissance résiduelle en sortie de cœur.

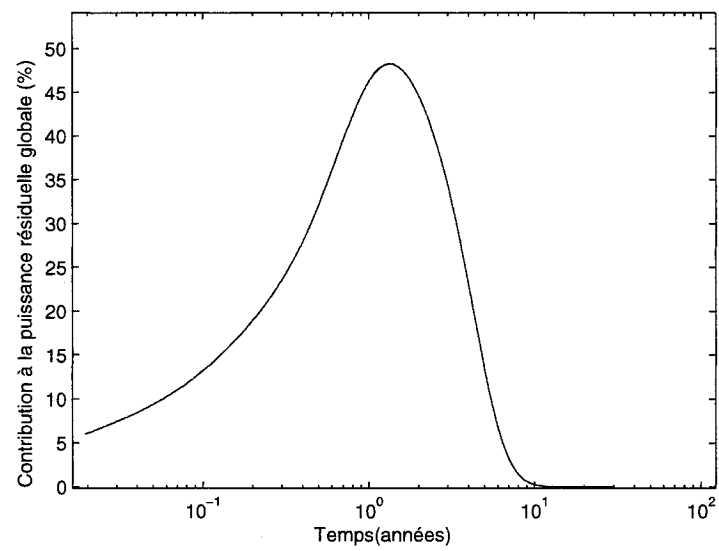
La figure 5.10 illustre la manière dont se répartissent les rôles de contribution majeure à la puissance résiduelle une fois que le groupe 1 disparaît de l'inventaire, au-delà de 2 ans. À partir de ce moment, ce sont des isotopes tels que le praseodyme 144 et le rhodium 106 qui vont contribuer le plus à la puissance résiduelle. En fait, leur contribution était visible depuis la sortie du cœur et constante. Mais elle ne devient prépondérante qu'après 77 jours pour l'un et 135 jours pour l'autre, augmentant progressivement en proportion, par rapport au bilan total (voir la figure 5.11, commentée par la suite). Ce sont ces deux isotopes, ou pour être précis, leurs familles (au sens présenté par les schémas du chapitre 4.1.4), qui maintiennent le niveau d'activité à une valeur élevée durant la fin de la première année et jusqu'à 7 ans après la sortie du cœur.

Ce comportement explique probablement en grande partie le point d'inflexion remarqué sur la courbe générale au bout de 6 ans, il s'agit probablement des 2 responsables de cette diminution importante de la puissance résiduelle globale. En effet, une étude proportionnelle de leur contribution montre par exemple que le praseodyme 144 tout comme le rhodium 106 sont responsables, chacun, d'un quart des émissions d'énergie par la grappe 4 ans après la sortie du cœur (voir la figure 5.11)<sup>8</sup>, alors que la figure 5.10 présente bien l'effondrement de leurs contributions aux alentours du point d'inflexion de 6 ans. Les rôles des autres isotopes suivis, durant les premières années, sont relativement anecdotiques. Passé les 6 ou 7 première année, la puissance résiduelle n'est plus que de

---

<sup>8</sup>Leurs proportions combinées totalisent même 78% des émission juste après la chute du groupe 1, soit après deux années passées hors cœur

FIGURE 5.11 Proportion de la contribution du praseodyme 144 à la puissance résiduelle totale.



quelques watts par grappe. La plupart des isotopes à vies courtes ont achevé leurs rôles de contributeur à la puissance résiduelle, et l'on entre dans une zone plus lente de la décroissance de la puissance résiduelle. Changement d'échelle donc, les jours, ou mois, utilisés pour les très court et court termes sont remplacé ici par des années.

Mais, le cas de l'yttrium 90 mérite un peu d'attention malgré sa demie-vie courte. En effet, sa production en cœur relativement importante lui a permis de contribuer quelque peu à la puissance résiduelle juste après la sortie du cœur. Pourtant, son rôle ne s'arrête pas là, et nous observons à la figure 5.12 sont retour, en temps qu'acteur prépondérant, au-delà de 10 ans. En fait, son précurseur par décroissance radioactive (le strontium 90) le produisait de façon constante depuis le début, mais cette quantité devient non négligeable suite à la chute des contributions des autres isotopes. Aux cotés de l'yttrium 90 cité précédemment et de son précurseur le strontium 90, le césium 137, dont bizarrement aucun précurseur ne soutient la présence entre également en jeu pour maintenir la puissance résiduelle à un bon niveau jusqu'au second point d'inflexion aux alentours de 60 ans. En fait, ce point est crucial dans la gestion des déchets : c'est celui qui marque le basculement, dans la nature des rayonnements, entre  $\beta$  et  $\alpha$ .

En effet comme le montre la figure 5.13, à partir de 56 ans la contribution à la puissance résiduelle devient majoritairement issue de décroissances  $\alpha$ . Si le très court terme était dominé par le rayonnement  $\gamma$  et le court terme par le  $\beta$ , le moyen terme est plutôt synonyme d'équilibre entre les trois types de rayonnements. A contrario, le long et très long terme risque d'être clairement ceux du rayonnement  $\alpha$  : ce qui, au vu des différentes demie-vie de décroissance  $\alpha$ , signifiera un nouveau rapport d'échelle et des ordres de grandeurs temporels de centaines voir milliers d'années.

Le second point d'inflexion est donc également synonyme de la fin de la domination des produits de fissions dans la production de chaleur résiduelle. Après 60 ans, ce sont les actinides, produits d'activation de l'uranium, qui seront responsable de la quasi-totalité des émissions radioactive et de la puissance résiduelle.



FIGURE 5.12 Évolution de la contribution en puissance des différents isotopes à moyen terme

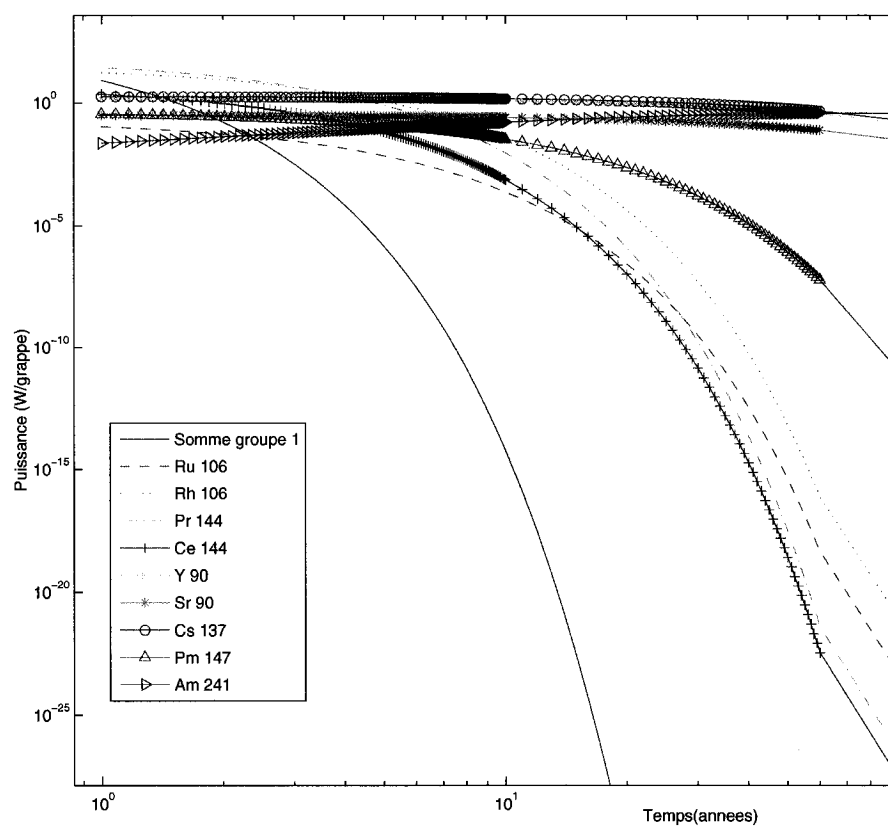


FIGURE 5.13 Évolution de la proportion de contributions à la puissance résiduelle selon le type de rayonnement.

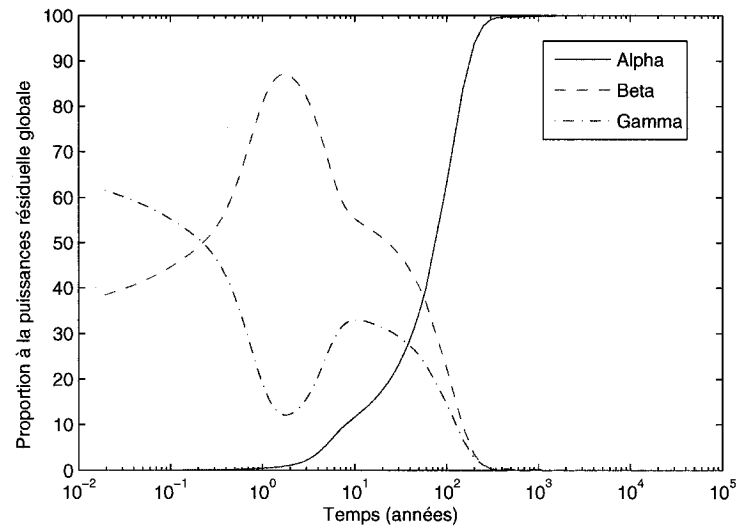
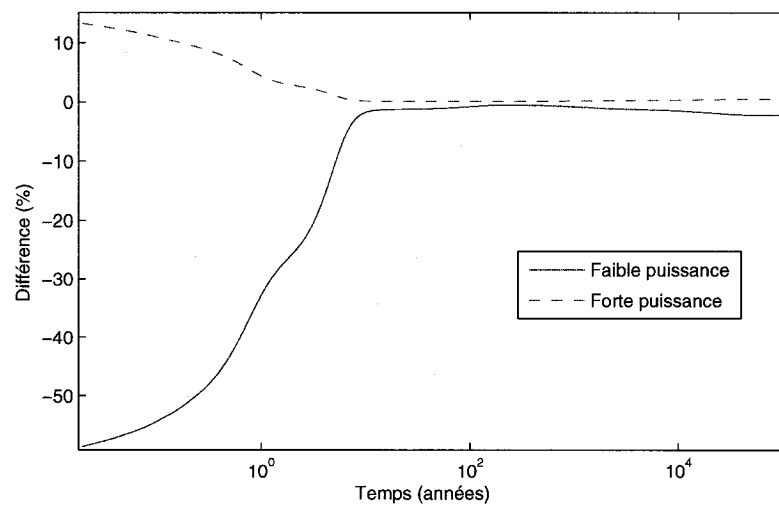


FIGURE 5.14 Différences de puissances résiduelles suivant le niveau de combustion en cœur, par rapport au cas nominal.



### 5.2.2 Paranthèse : l'impact de la puissance de combustion

Une autre manière de présenter le résultat de la section 5.1.2.1 est de calculer les pourcentages de différence entre les deux niveaux non nominaux et le niveau de référence. Ceci est illustré à la figure 5.14. Nous y remarquons, notamment sur la courbe concernant les faibles niveaux de puissance, deux points d'inflexion. Il s'agit bien évidemment de la fin de la contribution des isotopes des groupes 1 et 2, dont plusieurs représentants ont été cités au chapitre 3 comme influencés par la puissance à laquelle nous avons brûlé notre combustible. C'est le cas du cérium 144, précurseur du praseodyme 144 (groupe contribuant à la puissance résiduelle numéro 2) par exemple : ce qui explique parfaitement la déformation de la courbe aux alentours de 2 ans. Enfin, nous pouvons noter également le léger rôle joué par les américium 241 et 242, dont l'importante variation de concentration selon la puissance se retrouve au-delà de 100 ans. L'écart dans notre estimation est d'environ 2%. Cependant cette différence peut être parfaitement négligée, ce qui permettrait, encore une fois, d'ignorer la puissance à laquelle la grappe a été brûlée en cœur, pour les calculs de puissance résiduelle à long et très long terme.

### 5.2.3 Synthèse : Classification des contributions

Pour simplifier la compréhension de ces résultats à court et moyen terme, nous avons classé dans le tableau 5.1 les différents isotopes en fonction de leur participation à la puissance résiduelle dans le temps<sup>9</sup>.

Les émetteurs alpha et notamment les plutonium ayant un rôle relativement petit sur cette période de temps (même si ce rôle va en progressant tout au long du refroidissement)<sup>10</sup>, et nous n'avons donc considéré ici que les produits de fission.

Les isotopes sont répertoriés en 3 groupes de contributeurs majeurs, chacun de ses

<sup>9</sup>Ceux initialement contenus dans la bibliothèque de départ étant écrit en caractère gras.

<sup>10</sup>Voir la section 5.3 pour plus de détail.

groupes rassemblant les isotopes qu'il faut absolument surveiller si les conditions expérimentales évolues. En effet, si nous comparons cette liste d'isotopes avec la liste 3.3

TABLEAU 5.1 Ordre de contribution des différents isotopes lors du refroidissement des grappes de combustibles.

	Groupe 1		Groupe 2	Groupe 3
Période	100 premiers jours		De 100 jours à 7 ans	De 7 à 60 ans
Isotope	$^{89}_{38}Sr$	$^{91}_{39}Y$	$^{106}_{44}Ru$	$^{90}_{39}Y$
	$^{95}_{41}Nb$	$^{95}_{40}Zr$	$^{106}_{45}Rh$	$^{90}_{38}Sr$
	$^{103}_{44}Ru$	$^{131}_{53}I$	$^{144}_{59}Pr$	$^{137}_{55}Cs$
	$^{132}_{53}I$	$^{140}_{57}La$	$^{144}_{58}Ce$	$^{147}_{61}Pm$
	$^{140}_{56}Ba$	$^{141}_{58}Ce$		$^{241}_{95}Am$
	$^{143}_{59}Pr$	$^{147}_{60}Nd$		

présentée au chapitre 3.3.2, nous remarquons la présence commune de différents isotopes. Ainsi, nous remarquons que les ruthenium 103, praseodyme 143, cérium 141 et autre néodyme 147 sont tous influencés de manière linéaire croissante avec la puissance. Nous pouvons donc penser que la puissance résiduelle sera elle-même influencée de façon linéaire croissante avec la puissance sur les 100 premiers jours. À court terme, seul le cérium 144 est influencé par la puissance, de façon logarithmique croissante. Nous retrouvons donc parfaitement ici le résultat du chapitre 3 qui précisait que la puissance à laquelle étaient brûlées les grappes en cœur n'avait une influence que sur le début du refroidissement, sauf pour l'américium 241. En effet, à moyen et long terme, cet isotope a une influence considérable sur la puissance résiduelle notamment au-delà de 150 ans, lorsque les décroissances  $\alpha$  sont devenue prépondérantes. Cet isotope avait échappé à notre analyse car son activité absolue n'est pas extraordinaire <sup>11</sup>. Mais il devient prépondérant dans notre modèle en représentant 60% des émissions  $\alpha$  (et 40% des émissions totales) au bout de 100 ans. La liste 3.3 présentait également plusieurs autres actinides influencés par le niveau de puissance dans un CANDU-6, aucun d'eux n'a de demie-vies susceptible de rendre sont évaluation aléatoire déterminante pour un calcul

<sup>11</sup>La courbe des  $\alpha$  de la figure 5.8 est bien inférieure à la courbe globale

précis de la puissance résiduelle. En effet, pour que l'isotope ait une influence réelle sur la puissance résiduelle, il faudrait une demie-vie supérieure à 150 ans, là où les actinides pèsent fortement sur le calcul. Or des isotopes tels que le neptunium 238 (quelques jours de demie-vie) ou même plutonium 241 (demie-vie de 14 ans environ) ne correspondent pas. Il est intéressant de remarquer que la présence d'un précurseur à demie-vie longue (comme pour les chaînes de produits de fission que nous avons ajoutées) n'aurait aucune influence, car nous considérons ici un autre problème : l'influence de la puissance en cœur sur l'inventaire final. Si production hors-cœur par un précurseur à demie-vie longue il y a, elle est découplée de la puissance sauf si ce précurseur à lui-même vu sa concentration varier en cœur avec la puissance.

### 5.3 La puissance résiduelle sur le long terme

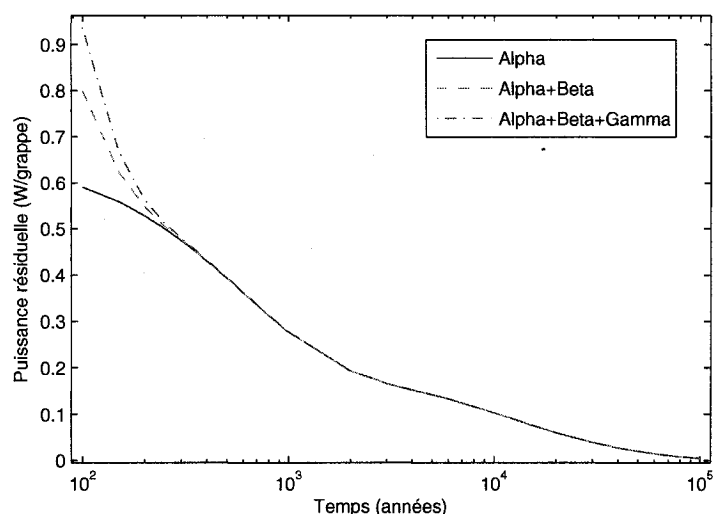
Si nous nous sommes heurtés, pour l'étude à court et moyen terme, à la difficulté de comparer nos résultats à des données dont nous connaissons exactement les différentes conditions expérimentales, pour l'étude à long terme l'écueil est différent : l'inexistence de données expérimentales. Ainsi, bien que notre étude du chapitre 3, certifie que les conditions expérimentales ont peu d'influences sur la puissance résiduelle, nous ne pourrions pas compter pour autant sur des données de comparaisons exploitables. Nous savons cependant que les isotopes qui génèrent la puissance résiduelle sont essentiellement des actinides. Cet état de fait nous permet d'entrevoir les causes probables de différence entre nos calculs et la réalité : à savoir l'évaluation incomplète des concentrations des actinides tel que déjà évoquée à la section 5.1.3.

Cela dit, nous pensons que notre estimation est relativement fiable, notamment pour les évaluations de la puissance résiduelle relative aux différents plutoniums qui sont fréquemment cités dans les études relatives à l'activité des déchets à long terme, car nous avons choisi de suivre toutes les chaînes de noyaux lourds dont les représentants avaient des demie-vie suffisamment faibles lors de l'étude des chaînes de décroissance (voir la section 4.1.3 pour les détails).

### 5.3.1 Allure générale de la puissance résiduelle

Une grappe d'uranium naturel, avant son entrée dans un réacteur CANDU-6, dégage environ 0,14 milliwatts. Il faut savoir que cette valeur est bien inférieure à celle que dégage la masse équivalente de minerai naturel in-situ. En effet, celui-ci contient plusieurs descendants de l'uranium 238 issus de 4,5 milliards d'années<sup>12</sup> de décroissance, qui génèrent évidemment de l'énergie, mais qui ont été séparés de l'uranium lors de la fabrication du combustible. Nous n'avons malheureusement pas eu le temps d'évaluer la puissance dégagée par le minerai, mais ce calcul serait facilement réalisable avec les outils développés dans le cadre de ce travail. Il conviendrait simplement de compléter les chaînes de décroissances radioactives que nous avons volontairement stoppées pour simplifier nos calculs et de compiler les données d'énergies dégagées par les isotopes ainsi ajoutés dans le fichier de type DV.

FIGURE 5.15 Puissance résiduelle d'une grappe sur le très long terme.



<sup>12</sup>L'âge de la terre.

C'est à l'activité du minerai d'uranium que sont habituellement comparé les calculs d'activité du combustible irradié, voilà pourquoi il aurait été intéressant de posséder une donnée similaire pour y faire référence sur la figure 5.15 qui présente l'évolution de la puissance résiduelle sur le très long terme. Cependant, comme nous l'avons déjà expliqué à différentes reprises, les notions d'activité et de puissance résiduelle ayant en commun la demie-vie isotopique, nous pouvons supposer que le retour à un niveau d'émission énergétique similaire au minerai naturel devrait se situer quasiment en même temps que celui lié aux activités, soit environ 11000 ans.[Wiles, 2002] À ce moment, la puissance résiduelle d'une grappe de combustible est encore de l'ordre de 100 milliwatts, soit un dixième seulement de celle calculée après 100 années de refroidissement (elle est alors de l'ordre du watt).

### **5.3.2 Les plutoniums**

Le cas du plutonium est particulièrement intéressant, car cet actinide est produit en grande quantité dans les réacteurs nucléaires, et ses différents isotopes sont souvent bien plus actifs que ceux de l'uranium, malgré la plus grande concentration de ceux-ci. Cette forte activité se traduit tout naturellement en terme de puissance résiduelle.

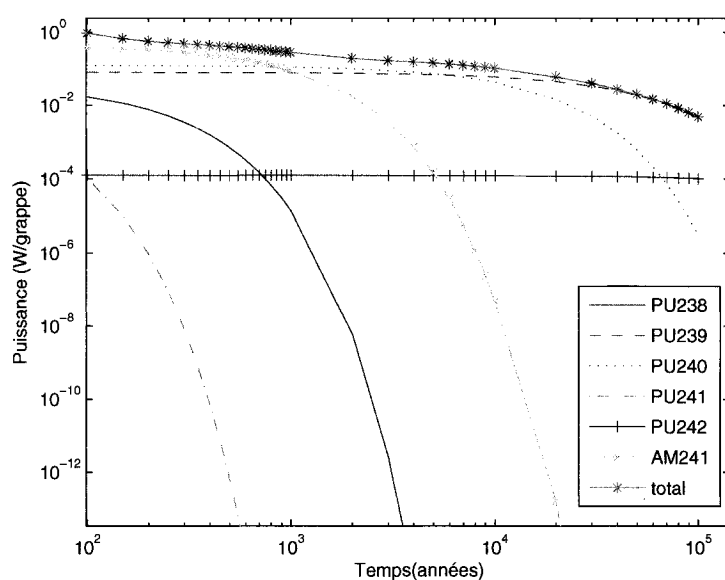
#### **5.3.2.1 Le plutonium 236**

Le cas du plutonium 236, dont il avait été question dans le chapitre 4.1.3, s'est avéré un piètre contributeur. En effet, la puissance résiduelle dégagée par la famille de ses fils, pourtant particulièrement actifs, a été handicapée par la très faible concentration initiale en cet isotope et n'a jamais dépassée  $1,4 \cdot 10^{-4}\%$ .

### 5.3.2.2 Les autres plutoniums

La figure 5.16 présente les contributions à la puissance résiduelle des autres isotopes du plutonium, nous y avons ajouté la puissance fournie par un autre actinide de premier plan : l'américium 241, et la puissance résiduelle totale pour mieux comparer les valeurs. L'échelle est doublement logarithmique. Nous y notons plusieurs résultats clas-

FIGURE 5.16 Puissance résiduelle due aux plutoniums à très long terme.



siques, ainsi la puissance résiduelle d'une grappe à long terme est-elle essentiellement dû à 3 isotopes : l'américium 241, le plutonium 239 et le plutonium 240. Ces deux derniers isotopes produisent environ  $0,1 \frac{\text{watt}}{\text{grappe}}$  chacun durant 10000 ans, ainsi après la disparition de l'américium 241<sup>13</sup>, ils représentent chacun quasiment la moitié de la production d'énergie. Au delà de 10000 ans, seul les plutonium 239 et plutonium 240 contribuent à la puissance résiduelle selon notre modèle. Mais nous savons aussi que c'est également

<sup>13</sup>Au delà de 1000 ans.



le moment où les fils des autres actinides commencent à contribuer... seulement nous ne les avons pas ajoutés dans nos chaînes de décroissance. Nous atteignons ici la limite temporelle de notre calcul. Mais une simple mise à jour des chaînes de décroissance et des énergies associées permettrait de faire facilement cette évaluation avec la version actuelle de DRAGON.

## 5.4 Conclusion

Au cours de ce chapitre, nous avons finalement étudié la puissance résiduelle et la manière dont elle évoluait durant les années suivant la sortie du cœur. Notre modèle a prouvé sa fiabilité, et même s'il manque encore de précision, il permet d'ores et déjà d'évaluer la puissance résiduelle, mais aussi de comprendre les mécanismes qui la génèrent. Ainsi avons-nous pu expliquer en détail l'évolution de cette puissance résiduelle. Nous avons prouvé qu'elle se distribuait essentiellement en 4 périodes bien particulières :

- La période  $\gamma$  : le très court terme, entre la sortie du cœur et 100 jours. La puissance résiduelle est alors essentiellement générée par les radiations  $\gamma$  et  $\beta$  des isotopes du groupe 1<sup>14</sup>. La puissance résiduelle est réduite d'un facteur 10 et passe de  $2900 \frac{W}{grappe}$  à  $225 \frac{W}{grappe}$ <sup>15</sup>.
- La période  $\beta$  : court terme, entre 100 jour et 7 ans. La puissance résiduelle est dépendante des décroissances  $\beta$  et passe de  $225 \frac{W}{grappe}$  à  $4,05 \frac{W}{grappe}$ <sup>15</sup>. Cette période peut être décomposée en 2 sous-périodes : avant ou après 2 ans. Avant 2 ans, la puissance résiduelle est générée par les isotopes du groupe 1, alors que seuls les isotopes des familles de nombres de masse 106 et 144 sont responsables sur la seconde sous-période.
- Le moyen terme, entre 7 et 60 ans, où les trois types de rayonnements contribuent de façon à peu près égale et la puissance résiduelle reste à peu près constante (entre  $4,05 \frac{W}{grappe}$  et  $1,48 \frac{W}{grappe}$ )

<sup>14</sup>Voir le tableau 5.1 pour le récapitulatif des isotopes contribuant à très court, court et moyen terme.

<sup>15</sup>Selon notre calcul, pour un cas nominal, dans un CANDU-6, pour un combustible CANFLEX à 43 crayons d'uranium naturel.

- La période  $\alpha$  : le long et très long terme où la puissance résiduelle évolue très lentement et n'évolue d'un facteur 10 en 10000 ans : elle passe de  $930 \frac{\text{milliwatt}}{\text{grappe}}$  à  $101 \frac{\text{milliwatt}}{\text{grappe}}$  entre les 100 et 10000 années suivant la sortie du cœur. Cette puissance résiduelle est essentiellement générée par trois isotopes : l'américium 241, le plutonium 239 et le plutonium 240.

Nous avons également confirmé que seules les deux premières périodes étaient influencées<sup>16</sup> par la puissance à laquelle la grappe avait été brûlée dans le cœur. Ceci permet de négliger ce paramètre au-delà de 6 années hors cœur et d'adopter les mêmes procédures de manipulation ou stockage pour tous les cas.

De plus, le passage d'une période d'évolution à une autre correspond souvent au moment propice au déplacement du combustible : 6 ans après la sortie du cœur, 60 ans ou 300 ans, car l'évolution de la puissance résiduelle<sup>17</sup> vient de subir un changement important ou s'apprête à suivre une période de stabilité.

Seule la dernière date butoir de 300 ans est peut-être plus éloignée du point de basculement sur la période  $\alpha$ . Nous rappelons que le moment où les émissions  $\beta$  et  $\gamma$  disparaissent quasiment complètement est situé 150 ans après la sortie du cœur. La puissance résiduelle est alors de  $660 \frac{\text{milliwatt}}{\text{grappe}}$  et sera de  $480 \frac{\text{milliwatt}}{\text{grappe}}$ <sup>15</sup> au bout de 300 ans. Il pourrait être intéressant de considérer ses valeurs dans le cadre d'un calcul de thermodynamique pour savoir si la chaleur émise supplémentaire serait importante si l'on décidait d'avancer l'enfouissement final des grappes à cette date, ou si, au contraire, il serait négligeable.

---

<sup>16</sup>Au delà de 2% d'écart dans l'évaluation.

<sup>17</sup>Et donc de l'activité...

## CONCLUSION

La gestion du combustible usé, sorti des réacteurs nucléaires civils, constitue un enjeu social, économique et industriel majeur. Or la grande particularité de ce combustible, outre la question de son statut même de déchet, est de savoir résoudre par lui-même le problème qu'il pose... si on lui en laisse le temps. Car avant cette résolution, il peut s'écouler plusieurs milliers voir millions d'années. La connaissance de l'évolution du risque lié aux grappes de combustible est donc primordiale, pour pouvoir juger des éléments essentiels, importants ou accessoires lors de prises de décisions impliquant de telles périodes de temps. Mais cette connaissance est aussi nécessaire pour assurer la sécurité lors du suivi et du stockage de ce combustible.

Parmi toutes les données intéressantes à étudier, la puissance résiduelle relâchée par les éléments irradiés est celle qui a retenu notre attention dans de ce mémoire. Nous en avons présenté les mécanismes, les conditions et les comportements.

### Récapitulatif des notions générales

La première partie de notre recherche visait à étudier les concepts physiques permettant de modéliser la puissance résiduelle. Nous avons remarqué la proximité des notions d'activité et de puissance résiduelle, couplées toutes les deux aux notions de demie-vies et de concentration isotopique. Malgré la simplicité de la formule permettant de calculer la puissance résiduelle, nous nous sommes heurtés à la faible quantité de résultats disponibles dans les différentes sources consultées.

Expérimentalement, l'absence de données s'explique notamment par les durées d'étude considérées, la technologie nucléaire est récente au regard des périodes de mesures demandées pour une étude complète, mais également par la dangerosité du matériel considéré et donc la difficulté liée aux mesures. Du point de vue de la simulation, le manque de données disponibles dans la littérature vient essentiellement de la quantité d'information à gérer pour évaluer d'une façon correcte la puissance résiduelle.

Pour une évaluation complète, il faudrait connaître l'ensemble des chaînes de décroissance de tous les produits de fission par exemple. Cependant, nous avons proposé une approche différente basée sur l'étude préalable des rôles de chacun des isotopes contribuant, cherchant à comprendre quand, en quelle proportion, et pourquoi ceux-ci participent à la puissance résiduelle. Ceci avait pour but de limiter le nombre d'isotopes à suivre dans un calcul. En parallèle, nous avons également cherché à valider les conditions d'études, et les différentes influences que pouvait avoir le comportement en cœur sur l'inventaire isotopique final, donc sur la puissance résiduelle. Tout ceci afin de tenter d'expliquer par la suite la marge d'erreur entre notre modèle et les quelques données de comparaisons disponibles.

### **La modélisation**

Nous avons présenté dans ce mémoire le cheminement qui nous a conduits à programmer, valider puis utiliser 2 nouveaux modules pour DRAGON(version 3.04 puis 3.05). Ces modules utilisent les données de concentration issues de simulations en cœur et celles d'énergies de décroissance qu'il nous a fallu compiler.

La limite évoquée plus haut : à savoir l'impossibilité d'obtenir l'ensemble exhaustif des concentrations de tous les isotopes produits dans un réacteur nucléaire<sup>18</sup>, fut rapidement rencontrée. Nous nous sommes affranchis de cette limite en détaillant et comprenant les rôles des différents isotopes considérés. Mais nous avons consciemment choisi par là d'écarter de nombreux isotopes dont la contribution ne pouvait avoir d'importance si nous les considérions séparément.

Ce choix ne permet pas d'utiliser nos calcul sur le très court terme : durant les quelques jours suivant la sortie du cœur. Mais nous ne pensons pas que cette approximation soit responsable de la différence d'évaluation finale entre notre modélisation et les autres simulations prises en références observée dans le dernier chapitre. Si leur contribution seule est quasiment négligeable, la somme de leurs contributions peut pro-

---

<sup>18</sup>Corollaire de la quantité d'information isotopiques à gérer

voquer un *bruit de fond* de quelque dizaine de watts sur la première année par exemple, mais cela restera négligeable. Nous savons cependant que la différence, très marquée au début, s'estompe avec le temps en raison notamment de la simplification progressive, par décroissance radioactive, de la composition isotopique. Une étude complète élargissant le nombre de chaînes isotopiques serait la seule solution pour dissiper le doute qui reste sur cette contribution.

Nous avons également écarté les isotopes à trop faible durée de vie pour contribuer au-delà de la journée suivant la sortie du cœur. Cette dernière approximation est responsable de la très grande différence qui existe entre notre modélisation et les calculs plus complets de puissance résiduelle concernant la grappe immédiatement sortie du cœur. Elle empêche toute utilisation immédiate de notre méthode de calcul pour les analyses accidentelles telles que les pertes de caloporteur. Cependant, elle ne gêne en rien les résultats obtenus à plus long terme, but initial de notre réflexion.

Les données ajoutées pour effectuer le calcul, à savoir certains rendements de fission et autre énergie libérée par décroissance radioactive devraient peut être elle aussi subir une étude statistique plus poussée afin de vérifier que les valeurs moyennes considérées restent correctement évaluées et surtout pour avoir une idée de la précision de nos calculs (évaluation des marges d'erreur, notamment en connaissant l'écart type des chiffres utilisés par exemple)

### **Avancés réalisées**

Nous avons validé l'utilisation des données sorties par le logiciel DRAGON, et les avons traitées via notre module supplémentaire pour le calcul de la puissance résiduelle. Par la suite, pour plus de précision, il faudrait complexifier encore la bibliothèque, c'est à dire augmenter la quantité de données en entrée du logiciel. Les outils permettant d'évaluer la puissance résiduelle sont maintenant disponibles, l'important avant de les utiliser était d'en connaître les limites, ce qui a été rappelé à la section précédente.

En gardant à l'esprit les bornes fixées par ces limites et entre lesquelles ils se situent,

nous pouvons récapituler les différents apports de notre travail sans crainte de surestimer leurs importances. La première amélioration, par exemple, est liée à la séparation de la production d'énergie issue des décroissances  $\alpha$ ,  $\beta$  et  $\gamma$  qui nous a permis de décomposer la décroissance radioactive d'une grappe irradiée en différentes périodes de temps et de comprendre que certains des choix effectués par l'industrie électronucléaire avait en fait une réalité physique simple. Par le même raisonnement, nous avons différencié les *acteurs* de la puissance résiduelle. Cela nous a permis de comprendre l'agencement des contributions dans le temps et de vérifier que nos choix dans l'allongement ou les limites des chaînes de décroissances radioactives étaient justifiées. Cela nous a permis d'illustrer en parallèle l'influence que peut avoir la puissance en cœur et l'historique de combustion des grappes sur la puissance résiduelle ou l'activité. Nous avons notamment remarqué qu'à burnup de sortie égal, l'influence était bien plus marquée sur les produits de fission que sur ceux d'activation, et donc que la puissance résiduelle pouvait être fortement différente durant les premières années suivant la sortie du cœur (jusqu'à 50 ans) mais relativement peu affectée sur le long et très long terme.

### **Travaux futurs**

En partant des calculs effectués, il pourrait être très intéressant de coupler les résultats fournis par DRAGON avec un modèle thermodynamique d'évolution d'un ensemble de stockage. Ceci permettrait d'étudier le comportement à long terme des structures entourant le combustible sous l'effet de la chaleur. Il faudrait cependant pallier aux différentes limites présentées plus haut et notamment celles relatives à la sous-estimation continue de notre modèle par rapport à la réalité. Car celle-ci pourrait empêcher toute évaluation raisonnable et sécuritaire de la chaleur résiduelle.

Par contre, notre travail ne peut pas servir à évaluer le rayonnement émis par le combustible au refroidissement, car il évalue l'énergie diffusée de façon isotrope alors que les rayonnements peuvent être émis dans une direction privilégiée et nécessiterait le développement d'une modélisation sophistiquée de leurs émissions.

Cependant les notions de contribution successives à la puissance résiduelle des rayonnements  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$  et le travail d'étude des différentes chaînes de décroissances des produits de fissions peut servir de point de départ pour comprendre la manière dont le rayonnement global d'une grappe évolue avec le temps, mais aussi l'influence que peuvent avoir les incertitudes d'évaluation des différentes bibliothèques tels que les sections efficaces (qui influent sur la composition isotopique finale).

## RÉFÉRENCES

- [Baum et al., 2003] BAUM M., KNOX H. D. et MILLER T. R. *Nuclides and isotopes, chart of the nucleide*. Lockheed Martin edition, 16 edition, 2003.
- [Bonche, 2002] BONCHE P., éditeur. *Le nucléaire expliqué par des physiciens*. EDP sciences, Les Ulis (France), 2002. ISBN 2-86883-575-9.
- [Browne et Firestone, 1986] BROWNE E. et FIRESTONE R. B. *Table of radioactive isotopes*. Wiley-Interscience, a division of John Wiley & Sons Inc. New-York (USA), 1 edition, 1986. ISBN 0-471-84909-X.
- [Etherington, 1958] ETHERINGTON H., éditeur. *Nuclear engineering handbook*. Mc Graw Hill book compagny inc. (New-York, Toronto, Londres), 1 edition, 1958.
- [Farlow, 1994] FARLOW J. S. *An introduction to differential equations and their application*. Mc Graw Hill book compagny inc. (New-York, Toronto, Londres), 1994. ISBN 0-07-020030-0.
- [Gauld et al., 1995] GAULD I., CARLSON P. et LITWIN K. Production and validation of ORIGEN-S cross-section libraries for CANDU reactor fuel studies. Dans *Production and validation of ORIGEN-S cross-section libraries for CANDU reactor fuel studies*, Research Reactor Technology Branch. Whiteshell Laboratories. Pinawa, Manitoba, ROE1L0. Énergie Atomique du Canada Limitée, 1995.
- [Hebert et al., 1994a] HEBERT A., MARLEAU G. et ROY R. Dragon data structure. 1994.
- [Hebert et al., 1994b] HEBERT A., MARLEAU G. et ROY R. DRAGON :A *Collision Probability Transport Code for Cell and Supercell Calculations*. 1994. Institut de Génie Nucléaire, École Polytechnique de Montréal.
- [Hydro Québec, 2004] HYDRO QUÉBEC, éditeur. *Manuel des sources froide*. Hydro Québec, 2004.



- [Jagdish, 1995] JAGDISH K. T. *Nuclear wallet cards*, [En ligne]. National Nuclear Data Center, New-York (USA), 5 édition, 1995. Référence internet : <http://www.dne.bnl.gov/nndc.html>.
- [Magill et Galy, 2005a] MAGILL J. et GALY J. *Radioactivity and Nuclear Reactions*. Dans [Magill et Galy, 2005b], chapitre 3, pages 43–57.
- [Magill et Galy, 2005b] MAGILL J. et GALY J. *Radioactivity Radionuclides Radiation*. Springer-Verlag, Berlin (Allemagne), 2005. ISBN 3-540-21116-0.
- [Magill et Galy, 2005c] MAGILL J. et GALY J. *Type of radioactive decay*. Dans [Magill et Galy, 2005b], chapitre 4, pages 58–85.
- [Marleau, 2004a] MARLEAU G. *Équation du champ des noyaux*. Dans [Marleau, 2004b], chapitre 3, pages 29–45.
- [Marleau, 2004b] MARLEAU G. Physique statique des réacteurs.
- [Marleau, 2004c] MARLEAU G. *Traitement numérique de l'équation de transport multigroupe*. Dans [Marleau, 2004b], chapitre 7, pages 100–122.
- [Murugesan et Saroudis, 1989] MURUGESAN D. et SAROUDIS J. Point lepreau srwmf safety report, section 5.1. Dans *Point Lepreau spent fuel dry storage*. Énergie Atomique du Canada Limitée, 1989.
- [Nordborg, 2003] NORDBORG C., éditeur. *Logiciel Janis 2.0*. Nuclear Energie Agency, Issy-les Moulineaux (France), 2003.
- [Ramamoorthy, 2005] RAMAMOORTHY K. Travail de recherche en vue de l'optention d'un doctorat en physique nucléaire. collaboration spéciale.
- [Reuss, 2003a] REUSS P. *Aperçu sur les problèmes de conception de cœurs*. Dans [Reuss, 2003b], chapitre 18, pages 405–435.
- [Reuss, 2003b] REUSS P. *Précis de neutronique*, Collection génie atomique. EDP sciences, Les Ulis (France), 2003. ISBN 2-86883-637-2.
- [Rozon, 1992a] ROZON D. *Effet Xénon et Samarium dans un CANDU*. Dans [Rozon, 1992b], chapitre A, pages 339–377.

- [Rozon, 1992b] ROZON D. *Introduction à la cinétique des réacteurs nucléaires*. Édition de l'École Polytechnique de Montréal, Montréal (Québec), 1992. ISBN 2-553-00223-8.
- [Rozon, 2005a] ROZON D. *Équation de diffusion multigroupe*. Dans [Rozon, 2005b], chapitre 2, pages 13–14.
- [Rozon, 2005b] ROZON D. Gestion du combustible nucléaire.
- [Rozon, 2005c] ROZON D. *Le modèle de réactivité linéaire pour la gestion des PWR (REP)*. Dans [Rozon, 2005b], chapitre 3, pages 17–29.
- [Varin, 2006] VARIN É. Collaboration spéciale.
- [Varin et al., 2002] VARIN É., HEBERT A., KOCLAS J. et ROY R. *DONJON : A static and kinetics reactor code*. 2002. Institut de Génie Nucléaire, École Polytechnique de Montréal.
- [Varin et Marleau, 2004] VARIN É. et MARLEAU G. A first attempt at a CANDU core tracking using coupled DRAGON/DONJON calculation. Dans *International conference on simulation methods*. Montréal. 2004.
- [Wiles, 2002] WILES D. R. *The chemistry of nuclear fuel waste disposal*. Polytechnic International Press, Montréal (Québec), 1 édition, 2002. ISBN 2-553-01025-7.

# Index

A		D	
Activité . . . . .	91	Datation . . . . .	22
Activité . . . . .	25	decay . . . . .	xiv, xix, 183–185, 188, 196
Atomes lourds . . . . .	voir Noyaux lourds	decay . . . . .	43
B		decayvalue . . . . .	xix, 188
Burnup . . . . .	voir Taux de combustion	Déchets radioactifs . . . . .	1
BURN . . . . .	183	Décroissance radioactive . . . . .	8
C		Défaut de masse . . . . .	18
CANFLEX . . . . .	61	Demie-vie . . . . .	5, 9
Capture électronique . . . . .	5, 12, 15	équivalente . . . . .	9
Catégories de puissances . . . . .	98	DEPL . . . . .	134
Cellule . . . . .	60	DETAILCONTRI . . . . .	xix, 187
Coéfcient de multiplication effectifxx, 60,		DONJON . . . . .	1, 59
66–69, 71, 103		DRAGON . . . . .	vi,
Coefficient de réactivité du vide . . . . .	61		vii, xviii, 1–3, 23, 39, 41, 42, 44,
Canflex . . . . .	37		46, 47, 50–52, 54, 56, 63, 64, 106,
Crayon . . . . .	36		113, 116–118, 120, 122, 123, 125,
Grappe . . . . .	36		128–130, 133–136, 164, 167–169,
Constante de désintégration . . . . .	8, 11		177, 186, 190, 198
partielle . . . . .	12, 15	DV . . . . .	xix, 136, 137, 161, 183, 190, 194, 198
totale . . . . .	13, 15	E	
contrib . . . . .	xix, 187	Eau	
CORR . . . . .	193, 194	légère . . . . .	35
Criticité . . . . .	40	lourde . . . . .	2, 7, 35

- tritée . . . . . 7
- École Polytechnique de Montréal . . xx, 1
- EDC xiv, xix, 183, 185, 186, 190, 194, 195
- EDIT . . . . . 193–196
- Embranchement . . . . . 12
- Émetteur
- $\alpha$  . . . . . 74
- $\beta$  . . . . . 74
- Énergie
- d'appariement . . . . . 31
- de décroissance . . . . . 18
- de liaison . . . . . 18
- de masse . . . . . 17, 20
- totale . . . . . 8
- Enrichissement . . . . . 33
- Équations de Bateman . . . . . 12, 13
- Équation de champ des noyaux . . 10, 40
- Équation de transport . . . . . 39
- Équilibre du rechargement . . . . . 97
- EQV . . . . . xiv, xix, 183–186, 190–195
- Energy Decay Calculation . . . . . 2, 43
- Evaluation of Q-Values . . . . . 2, 43
- EVO . . . . . 192–195
- F**
- Famille isotopique . . . . . 10
- FIL . . . . . 193, 194
- FileName . . . . . 193, 194
- Filière
- Canadienne . voir Reacteur CANDU57
- Fission . . . . . 6
- induite . . . . . 31
- spontanée . . . . . 31
- Fluorescence . . . . . 4
- G**
- Groupe de comportement . . . . . 74
- I**
- inbr . . . . . 196, 197
- Institut de Génie Nucléaire . . . . . xx, 1
- Isomère . . . . . 5, 23
- Isotope . . . . . 10
- daughter . . . . . voir Isotope fils
- fils . . . . . 10, 12
- fissile . . . . . 31, 32
- mother . . . . . voir Isotope père
- père . . . . . 10
- sensible . . . . . 72, 73
- ISOTOPESMIX . . . . . 187
- L**
- LIB . . . . . 134, 183, 193, 204
- Libre parcours moyen . . . . . 34, 61
- N**
- nbrs . . . . . 196, 197
- Neutrino . . . . . 22
- Neutron . . . . . 6
- Nombres magiques . . . . . 5
- Noyaux lourds . . . . . 6, 11, 30, 38, 74
- NUMBERS . . . . . 195, 196

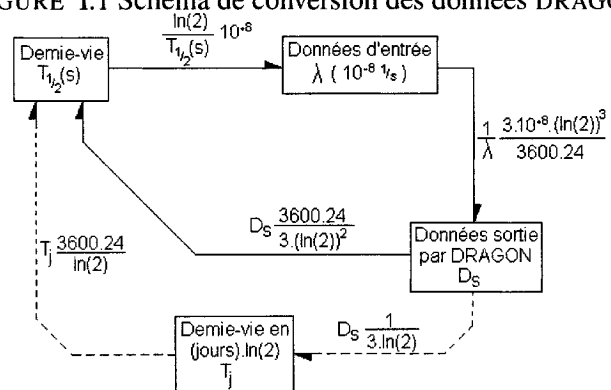
<b>O</b>	en marche . . . . .	2	
ONLYMIX . . . . .	195, 196	Réflecteur neutronique . . . . .	58
ONLYTIME . . . . .	195, 196	Réseau . . . . .	61
<b>P</b>		RESULTAT . . . . .	xiv, 187
PDEPLCH . . . . .	134	<b>S</b>	
Phosphorescence . . .	voir Fluorescence	Sections efficaces	
Positron . . . . .	5	macroscopiques . . . . .	11
Probabilité de collision . . . . .	39	Surgénération . . . . .	40
Produits de fission . . . . .	6	<b>T</b>	
Proton . . . . .	5	Taux de combustion . . . . .	59, 64, 66
Puissance résiduelle . . . . .	1	Tubes de force . . . . .	2
<b>R</b>		<b>V</b>	
Radioactivité . . . . .	4	Vallée de stabilité . . . . .	109
$\alpha$ . . . . .	5, 18, 19	<b>Y</b>	
$\beta$ . . . . .	5, 15, 21	Yeild . . . . .	voir Ratio de fission
$\gamma$ . . . . .	4		
artificielle . . . . .	6		
naturelle . . . . .	4		
Ratio de fission . . . . .	11		
Réaction en chaîne . . . . .	32, 41		
Réacteur			
ACR . . . . .	xx, 2, 35, 60		
CANDU-6 . . . . .	xx, 2, 35, 60		
PHWR . . . . .	2		
REP . . . . .	2, 35		
PHWR . . . . .	2		
Réactivité . . . . .	40		
Rechargement			
à l'arrêt . . . . .	35		

## ANNEXE I

## CONVERSION

Nous avons présenté sur le graphique ci dessous les différents coefficients permettant de jongler entre les différentes données affichées avant ou après les calculs de DRAGON.

FIGURE I.1 Schéma de conversion des données DRAGON.



## ANNEXE II

### DIFFÉRENCE DE CONCENTRATION EN SORTIE DE CŒUR SUIVANT LA PUISSANCE EN CŒUR, PAR RAPPORT AU CAS NOMINAL.

À l'issue de notre étude sur l'influence de la puissance en cœur sur la concentration des isotopes en sortie de celui ci, nous avons rassemblé les données issues de nos calcul pour en faciliter l'usage dans la suite de notre travail. Ces concentrations sont présentées ici. Nous rappelons que nos calculs ont été réalisés selon les niveaux de puissance présentés au tableau 3.1, que nous avons recopiés ci-dessous :

TABLEAU II.1 Choix des puissances

Pourcentage de la puissance nominale	CANDU			ACR		
	Puissance massique ( $\frac{MW}{t}$ )	Puissance grappe (kW)	Nom	Puissance massique ( $\frac{MW}{t}$ )	Puissance grappe (kW)	Nom
156,40%	50,00	962	CANDU04	60,00	1218	ACR04
115,73%	37,00	712	CANDU03	44,00	893	ACR03
100,00%	31,97	615	CANDU Norm	38,42	780	ACR Norm
37,54%	12,00	231	CANDU02	14,50	294	ACR02
12,51%	4,00	77	CANDU01	5,00	102	ACR01

TABLEAU II.2: Tableau récapitulatif des concentrations isotopiques à différents niveaux de puissance dans un CANDU-6.

	CANDU 01 Différence	CANDU 02 Différence	CANDU Norm $\frac{g}{grappe}$	CANDU 03 Différence	CANDU 04 Différence
$^{241}_{95}Am$	774,97%	243,41%	1,86E-05	16,56%	43,06%
$^{242}_{95}Am$	811,35%	254,42%	5,08E-08	16,67%	43,18%
$^{141}_{58}Ce$	64,23%	31,25%	3,73E-01	3,52%	9,75%
$^{144}_{58}Ce$	13,97%	3,33%	4,39E-01	0,51%	1,40%
$^{133}_{55}Cs$	37,27%	28,02%	3,79E-01	5,36%	17,33%
$^{134}_{55}Cs$	56,44%	42,88%	1,40E-03	6,63%	20,48%
$^{135}_{55}Cs$	391,05%	149,86%	3,39E-02	13,20%	35,52%
$^{154}_{63}Eu$	4,06%	4,66%	5,46E-04	0,00%	0,02%
$^{155}_{63}Eu$	4,30%	4,59%	2,56E-03	0,72%	2,51%
$^{156}_{63}Eu$	69,10%	37,38%	2,52E-03	4,48%	12,08%
$^{157}_{64}Gd$	3,48%	0,12%	5,39E-05	0,45%	2,21%
$^{135}_{53}I$	84,37%	62,49%	7,80E-03	15,75%	56,48%
$^{143}_{60}Nd$	101,63%	67,06%	2,14E-01	9,22%	26,86%
$^{144}_{60}Nd$	330,49%	118,78%	2,29E-02	9,71%	26,11%
$^{147}_{60}Nd$	80,12%	53,28%	9,49E-02	8,57%	25,40%
$^{148}_{60}Nd$	0,36%	0,77%	1,56E-01	0,23%	0,69%
$^{238}_{93}Np$	81,88%	57,71%	1,35E-04	13,04%	43,71%
$^{239}_{93}Np$	84,61%	62,90%	1,64E+00	15,98%	56,92%
$^{105}_{46}Pd$	32,10%	23,49%	7,04E-02	4,15%	13,60%
$^{147}_{61}Pm$	76,62%	55,93%	9,56E-02	8,48%	25,18%
$^{148}_{61}Pm$	52,72%	13,48%	4,08E-04	2,45%	10,67%
$^{148}_{61}Pm M$	89,84%	63,82%	3,06E-04	8,96%	26,25%
$^{149}_{61}Pm$	83,58%	61,07%	1,22E-02	14,76%	51,57%



Suite de la page précédente					
	CANDU 01	CANDU 02	CANDU Norm	CANDU 03	CANDU 04
	Différence	Différence	$\frac{g}{grappe}$	Différence	Différence
$^{151}_{61}Pm$	83,99%	61,77%	2,85E-03	15,23%	53,93%
$^{141}_{59}Pr$	223,02%	113,62%	1,12E-01	11,57%	31,96%
$^{143}_{59}Pr$	78,88%	50,51%	2,71E-01	7,54%	22,00%
$^{236}_{94}Pu$	0,69%	2,68%	4,74E-09	0,31%	0,94%
$^{238}_{94}Pu$	28,47%	22,28%	4,87E-04	3,60%	12,03%
$^{241}_{94}Pu$	25,99%	20,99%	2,34E-02	2,80%	9,18%
$^{242}_{94}Pu$	34,47%	27,18%	5,04E-04	3,10%	9,83%
$^{103}_{45}Rh$	262,70%	125,59%	4,09E-02	12,12%	33,17%
$^{105}_{45}Rh$	81,07%	56,69%	7,59E-03	11,93%	38,95%
$^{103}_{44}Ru$	57,59%	25,36%	1,75E-01	2,59%	6,92%
$^{147}_{62}Sm$	1339,45%	378,00%	6,72E-04	21,94%	53,86%
$^{149}_{62}Sm$	6,65%	5,02%	5,42E-03	1,17%	4,32%
$^{133}_{54}Xe$	83,69%	60,96%	1,50E-01	13,29%	43,04%
$^{135}_{54}Xe$	26,29%	9,35%	7,45E-04	0,64%	1,41%

TABLEAU II.3: Tableau récapitulatif des concentrations isotopiques à différents niveaux de puissance dans un ACR-700.

	ACR 01	ACR 02	ACR Norm	ACR 03	ACR 04
	Différence	Différence	$\frac{g}{grappe}$	Différence	Différence
$^{241}_{95}Am$	763,31%	159,34%	1,63E-01	12,57%	35,77%
$^{242}_{95}Am$	756,79%	158,72%	1,66E-03	12,55%	35,73%
$^{141}_{58}Ce$	89,58%	62,23%	1,05E+00	14,51%	56,03%
$^{144}_{58}Ce$	86,81%	51,99%	6,16E+00	7,38%	23,15%
$^{134}_{55}Cs$	57,02%	18,21%	8,98E-01	1,44%	3,78%

Suite de la page précédente					
	ACR 01	ACR 02	ACR Norm	ACR 03	ACR 04
	Différence	Différence	$\frac{g}{grappe}$	Différence	Différence
$^{135}_{55}Cs$	288,47%	102,07%	2,23E+00	10,19%	30,14%
$^{154}_{63}Eu$	11,30%	2,38%	1,54E-01	0,15%	0,34%
$^{155}_{63}Eu$	14,43%	3,00%	5,42E-02	0,20%	0,52%
$^{156}_{63}Eu$	89,66%	60,04%	5,24E-02	12,64%	46,42%
$^{157}_{64}Gd$	38,42%	25,01%	5,44E-04	5,20%	19,06%
$^{135}_{53}I$	89,59%	62,26%	9,74E-03	14,52%	56,15%
$^{144}_{60}Nd$	60,32%	36,07%	9,08E+00	5,18%	16,36%
$^{147}_{60}Nd$	89,26%	61,43%	1,43E-01	13,96%	53,24%
$^{238}_{93}Np$	89,18%	61,41%	1,17E-02	13,96%	53,23%
$^{239}_{93}Np$	89,52%	62,20%	1,62E+00	14,50%	56,03%
$^{105}_{46}Pd$	8,11%	5,75%	3,70E+00	1,27%	4,77%
$^{147}_{61}Pm$	61,90%	19,84%	2,81E+00	1,38%	3,28%
$^{148}_{61}Pm$	94,71%	64,14%	1,64E-02	12,16%	42,09%
$^{148}_{61}Pm M$	63,85%	20,64%	1,70E-02	1,45%	3,48%
$^{149}_{61}Pm$	92,11%	65,86%	2,63E-02	15,68%	60,65%
$^{151}_{61}Pm$	89,54%	62,08%	4,67E-03	14,39%	55,46%
$^{141}_{59}Pr$	8,32%	5,77%	1,18E+01	1,34%	5,18%
$^{143}_{59}Pr$	89,53%	62,12%	4,12E-01	14,43%	55,69%
$^{236}_{94}Pu$	44,33%	13,10%	7,75E-06	1,22%	3,60%
$^{241}_{94}Pu$	10,30%	2,35%	9,98E+00	0,19%	0,56%
$^{242}_{94}Pu$	8,20%	1,86%	3,78E+00	0,17%	0,50%
$^{103}_{45}Rh$	10,04%	7,14%	4,91E+00	1,67%	6,45%
$^{105}_{45}Rh$	88,61%	59,78%	2,05E-02	12,88%	47,85%
$^{103}_{44}Ru$	89,27%	61,40%	8,73E-01	13,89%	52,65%
$^{147}_{62}Sm$	388,11%	132,63%	6,02E-01	12,35%	35,95%
$^{149}_{62}Sm$	24,27%	9,23%	2,06E-02	0,92%	2,56%

Suite de la page précédente					
	ACR 01	ACR 02	ACR Norm	ACR 03	ACR 04
	Différence	Différence	$\frac{g}{grappe}$	Différence	Différence
$^{150}_{62}Sm$	14,46%	5,28%	3,23E+00	0,56%	1,61%
$^{151}_{62}Sm$	6,68%	2,09%	1,07E-01	0,14%	0,30%
$^{133}_{54}Xe$	89,52%	62,06%	1,96E-01	14,38%	55,44%
$^{135}_{54}Xe$	52,95%	18,57%	1,70E-03	1,84%	5,38%

## ANNEXE III

### NOTICES DE DRAGON

#### III.1 Nouveaux formats

##### III.1.1 Contenne de la liste chaîné de type /decay/

Ce répertoire de liste chaîné contient les données de départ de décroissance et les résultats de calcul de densité de puissance résiduelle. Nous allons le présenter ici en supposant que les modules EQV et EDC ont été exécuté en utilisant les entrées suivantes :

```
L_DV := EQV: DV LIB::
  EDIT 20
;

L_DV := EDC: L_DV LIB BURN ::
  EDIT 2
  ONLYTIME 4 NUMBERS 80 81 82 83
  ONLYMIX 3 NUMBERS 1 5 19
;
```

Où DV est un fichier de données d'entrée ASCII contenant les énergies de décroissance (voir sa notice relative : III.1.2), LIB est un fichier de donnée de type LIBRARY qui contient les informations de la bibliothèque isotopique, et BURN est un fichier de données de type BURNUP contenant les résultats des calculs successif de concentration isotopique. Vous trouverez plus de détails concernant les types de fichiers de données dans *Dragon Data Structure*[Hebert et al., 1994a].

### III.1.1.1 Le répertoire racine de /decay/

À la racine de la liste chaînée de type /decay/ nous trouvons les enregistrements suivants :

TABLEAU III.1: Entrées de /decay/ et sous-répertoire

Name	Type	Condition	Units	Comment
SIGNATURE_...C	*12			Signature de la liste chaînée (L_DECAY)
STATE-VECTOR	H(20)			Vecteur décrivant les paramètres associés avec cette liste chaînée : $S_i^c$
{/decayvalue/}	Dir			Répertoire de stockage des infos de EQV notamment les données relatives aux décroissances
ISOTOPEMIX_...C	( $S_2^d$ )			Vecteur contenant la structure des mélanges suivis
ISOTOPERNAME	R( $S_2^d * 8$ )			Noms de références des isotopes $NISO_i$
DEPL-TIMES_...R	( $S_4^d$ )		$10^8 s$	Vecteur récapitulant les temps de calculs pour lesquels le calcul de puissance résiduelle a été fait. $T_i$
MIXTURES_...J	( $S_3^d$ )			Vecteur décrivant les mélanges suivis

continued on next page

continued from last page

Name	Type	Condition	Units	Comment
<code>{/detailcontri/}</code>	Dir			Sous-répertoire contenant les détails de contribution à la puissance résiduelle si $E_{EditEQV} = S_6^c$ est supérieur à 10
<code>{/result/}</code>	Dir			Sous-répertoires contenant les résultats issue de EDC

La signature pour ce type de liste chaînée est L\_DECAY=L\_DECAY\_..... Les paramètres de dimension des données de la liste sont stockés dans le state-vector  $S_i^c$ , ce sont :

- Nombre d'isotopes dont les données furent collectées par le module EQV.  $N_{IsoEQV} = S_1^c$
- Nombre de couple isotopes-numéro de mélanges utilisés dans les données de type BURNUP.  $N_{IsoMix} = S_2^c$
- Nombre de mélanges étudiés dans le fichier /decay/.  $N_{NbrMix} = S_3^c$
- Nombre de temps auxquels sont calculées les puissances résiduelles.  $N_{Depl} = S_4^c$
- Niveau d'édition de EQV.  $E_{EditEQV} = S_5^c$
- Niveau d'édition de EDC.  $E_{EditEQV} = S_6^c$
- Option choisie sur les temps de calcul.  $N_{OpTime} = S_7^c$

$$N_{OpTime} = \begin{cases} -1 & \text{pas de fichier de type BURNUP en entrée de EDC} \\ 0 & \text{Calcul à tous les temps disponibles dans le fichier de type BURNUP} \\ N & \text{Option ONLYTIME activé pour N temps.} \end{cases}$$

- Statut de l'option CORR pour EQV  $B_{OpCORR} = \mathcal{S}_8^c$

$$B_{OpCORR} = \begin{cases} 0 & \text{non-active} \\ 1 & \text{active} \end{cases}$$

- Option choisie sur les mélanges calculés (ONLYMIX) par le module EDC.  $N_{OpMix} = \mathcal{S}_9^c$

$$N_{OpMix} = \begin{cases} 0 & \text{ONLYMIX non-active, calcul sur toutes les mélanges} \\ N & \text{ONLYMIX active pour le calcul de N mélanges} \end{cases}$$

- Nombre optionnel : si DRAGON évalue plus de 5 types d'interaction et réaction nucléaires, il convient d'entrer ici ce nombre.  $N_{OpReac} = \mathcal{S}_{10}^c$
- Nombre d'isotopes suivis par DRAGON.  $N_{Iso} = \mathcal{S}_{11}^c$

Les sous répertoires de type {/result/} sont nommés suivant le schéma suivant : RESULTAT<sub>i</sub>. Par exemple, pour un calcul avec  $\mathcal{S}_7^c = 2$  :

TABLEAU III.2: Exemple de sous-répertoire {/result/}

Name	Type	Condition	Units	Comment
RESULTAT <sub>111</sub> Dir				Sous-répertoire de puissance résiduelle au premier temps cité dans DEPL – TIME. Valeurs en $\frac{W}{cm^3}$
RESULTAT <sub>112</sub> Dir				Sous-répertoire de puissance résiduelle au second temps cité dans DEPL – TIME. Valeurs en $\frac{W}{cm^3}$

### III.1.1.2 Le sous-répertoire de données /contrib/ dans /DETAILCONTRI/

Les sous répertoires de {/detailcontri/} (Répertoire maître nommé DETAILCONTRI) sont nommés suivant le même schéma que ceux de type {/result/} : CONTRIBi. Par exemple, pour un calcul avec  $S_7^c = 2$  :

TABLEAU III.3: Exemple de sous-répertoire RESULTAT

Name	Type	Condition	Units	Comment
CONTRIB_1Dir				Sous-répertoire de détail de contribution à la puissance résiduelle au premier temps cité dans DEPL – TIME. Valeurs en $\frac{W}{cm^3}$
CONTRIB_2Dir				Sous-répertoire de détail de contribution à la puissance résiduelle au second temps cité dans DEPL – TIME. Valeurs en $\frac{W}{cm^3}$

Ces données sont les contributions détaillées des isotopes à un instant donné. Il faut utiliser les information de /ISOTOPESMIX/ pour savoir à quels isotopes et quels mélanges ces résultats sont liés.



### III.1.1.3 Le sous-répertoire de données /decayvalue/ dans /decay/

Dans le répertoire {/decayvalue/} (Nommé DECAYVALUE) l'ensemble des données suivantes peuvent être trouvées :

TABLEAU III.4: Contenu du répertoire {/decayvalue/} dans /decay/

Name	Type	Condition	Units	Comment
NBRISO_____I(1)				Nombre d'isotopes pour lesquels nous possédons des valeurs d'énergie de décroissance
NOM_____C( $S_1^d$ )*8				Noms des isotopes pour lesquels nous possédons des valeurs d'énergie de décroissance
NUMWIMS_____I( $S_1^c$ )				Numéro WIMS pour lesquels nous possédons des valeurs d'énergie de décroissance
DECAYENERGIER( $S_1^c$ )			MeV	Q-value de chacun des isotopes connus
BETAENERGIE_R( $S_1^c$ )			MeV	Énergie dégagée par décroissance $\beta$ pour chacun des isotopes connus
RATIOBETA____I( $S_1^c$ )				Ratio d'embranchement vers la décroissance $\beta$ pour les isotopes pour lesquels nous possédons des valeurs d'énergie de décroissance

continued on next page

continued from last page

Name	Type	Condition	Units	Comment
ALPHAENERGIER( $S_1^c$ )			<i>MeV</i>	Énergie dégagée par décroissance $\alpha$ pour chacun des isotopes connus
RATIOALPHA_LJ( $S_1^c$ )				Ratio d'embranchement vers la décroissance $\alpha$ pour les isotopes pour lesquels nous possédons des valeurs d'énergie de décroissance
OTHERENERGIER( $S_1^c$ )			<i>MeV</i>	Energie moyenne dégagée par les autres types de décroissance pour chacun des isotopes connus
RATIOOTHER_LJ( $S_1^c$ )				Somme des ratios d'embranchement vers les autre types de décroissance pour les isotopes pour lesquels nous possédons des valeurs d'énergie de décroissance
GAMMAENERGIER( $S_1^c$ )			<i>MeV</i>	Energie dégagée par la décroissance $\gamma$ pour chacun des isotopes connus
NEUTRINOENER( $S_1^c$ )			<i>MeV</i>	Energie théoriquement emporté par les neutrinos pour chacun des isotopes connus. Cette énergie est, en général, la valeur de Q-value auquel ont soustrait l'énergie dégagée par les décroissances connues pondérées de leur ratio associé

continued on next page

### III.1.2 Le fichier DV

8											
AM241	951	5.6379E+00	0.0000E+00	0	5.4800E+00	100	0.0000E+00	0	2.8700E-02	1.2920E-01	5.085
AM242	1952	6.7752E-01	1.5900E-01	82.7	0.0000E+00	0	1.9100E-02	17.3	1.8000E-02	4.8142E-01	1.201
AM242M	952	7.1900E-02	0.0000E+00	0	2.3200E-02	0.45	4.0300E-02	99.6	4.9000E-03	3.5000E-03	0.000
AM243	953	5.4387E+00	0.0000E+00	0	5.2656E+00	100	0.0000E+00	0	4.8100E-02	1.2500E-01	2.982
BA140	7140	1.0340E+00	2.7600E-01	100	0.0000E+00	0	0.0000E+00	0	1.8260E-01	5.7540E-01	6.291
CD113	4113	3.1600E-01	1.8300E-01	100	0.0000E+00	0	0.0000E+00	0	7.1000E-05	1.3293E-01	0.000
CD115M	0	1.6228E+00	6.0200E-01	100	0.0000E+00	0	0.0000E+00	0	3.2900E-02	9.8790E-01	0.000
CE141	0	5.8130E-01	1.4500E-01	100	0.0000E+00	0	0.0000E+00	0	7.7000E-02	3.5930E-01	2.468

FIN

Le fichier ci dessus est un exemple pour 8 isotopes, ainsi que l'indique la première ligne. Cette valeur est importante (si elle est mal saisie, on aboutit à une erreur de lecture du fichier).

Les lignes du fichier sont composées de :

- Nom de l'isotope, character\*12, (doit être celui utilisé dans la bibliothèque, ce que se chargera de vérifier EQV).
- Numéro WIMS de l'isotope, caractère\*4, (si ce numéro est inconnu, nous écrirons 0, comme ici pour le cérium 141)
- La valeur en *MeV*, character\*12 Écriture scientifique à 4 chiffres après la virgule, de l'énergie globale dégagée (Q-value). C'est en fait la différence de masse moyenne entre l'isotopes de départ et son (ou ses) fils.
- La valeur en *MeV*, character\*12 Écriture scientifique à 4 chiffres après la virgule, de l'énergie dégagée par décroissance  $\beta$ .
- Le ratio de décroissance  $\beta$  en pourcent, caractère\*4.
- La valeur en *MeV*, character\*12 Écriture scientifique à 4 chiffres après la virgule, de l'énergie dégagée par décroissance  $\alpha$ .
- Le ratio de décroissance  $\alpha$  en pourcent, caractère\*4.
- La valeur en *MeV*, character\*12 Écriture scientifique à 4 chiffres après la virgule, de l'énergie moyenne dégagée par les autres types de décroissances.
- La sommes des ratios des autres type de décroissances, en pourcent, caractère\*4.
- La valeur en *MeV*, character\*12 Écriture scientifique à 4 chiffres après la virgule, de l'énergie dégagée par les rayonnement  $\gamma$ .
- La valeur en *MeV*, character\*12 Écriture scientifique à 4 chiffres après la virgule, de l'énergie théorique emportée par les neutrinos.
- La valeur en  $10^{-8}s$ , character\*12 Écriture scientifique à 4 chiffres après la virgule, de la proposition de correction de  $\lambda$ .

- L'indicateur, caractère\*4, de prise en compte des embranchements par DRAGON.

Dernière remarque : Les noms des isotopes doivent être écrits en majuscules

## III.2 Nouveaux modules

### III.2.1 Le module EQV

Le module EQV est utilisé pour vérifier que les éléments dont on a spécifié l'énergie de décroissance dans le fichier d'entrée DV, sont bien présents dans la bibliothèque de sections efficaces microscopiques spécifiée (réferez vous à la notice associée pour le contenu de DV).

L'appel de EQV se fait de la manière suivante :

TABLEAU III.5: Structure de EQV

$Ldv := EQV : DV [LIB] : : (desceqv)$
---------------------------------------

où

<i>Ldv</i>	character*12 Nom de la liste chaînée, de type DECAY, issue de l'exécution du module.
<i>DV</i>	character*12 Nom du fichier ASCII à utiliser. Sa structure est définie dans la section le concernant (III.1.2)
<i>LIB</i>	character*12 Nom du fichier de données de type LIBRARY retourné par DRAGON après les calculs en coeur. Ce paramètre est nécessaire si on a utilisé l'option DEPLCHAIN avec EVO car c'est la chaîne de

décroissance modifiée qu'il faut prendre en compte pour les calculs de puissance résiduelle.

**(desceqv)** Structure des données en entrée du module EQV.

### III.2.1.1 Données d'entrée pour EQV

TABLEAU III.6: Structure de **(desceqv)**

```
[ EDIT iprt ]
[ LIB : { WIMS | WIMSD4 | WIMSEACL } FIL : FileName ]
[ CORR ]
;
```

où

EDIT Mot clef utilisé pour introduire *iprt*.

*iprt* Valeur de niveau d'édition. Pour tout  $iprt \leq 2$  l'édition sera minimale ; pour  $iprt > 3$  l'édition inclura les noms et autres details de la bibliothèque.

LIB : Mot clef utilisée pour introduire le type de bibliothèque, il ne faut utiliser cette fonction que si la chaîne de décroissance utilisé dans le module EVO est intact et que l'option DEPLCHAIN n'y a pas été activé. Dans le cas contraire, il faut rentrer le fichier .

WIMS La bibliothèque citée à sa suite sera de type WIMS

WIMSD4	La bibliothèque citée à sa suite sera de type WIMSD4 <u>Remarque</u> : le programme vérifiera que le type de bibliothèque donnée correspond bien à celui énoncé et s'arrêtera dans le cas contraire.
EDIT	Mot clef utilisé pour introduire <i>iprt</i> .
FIL :	Mot clef introduisant le nom de la bibliothèque.
FileName	Nom du fichier de la bibliothèque dans lequel on recherche les isotopes de DV.
CORR	Mot clef utilisé pour considérer les valeurs de lambda entrées via DV. <u>Remarque</u> : L'utilisateur peut entrer des valeurs de lambda ( $\lambda$ ) via DV et demander à EQV de les prendre en compte au moyen de ce mot clef CORR. Le module EDC utilisera ces valeurs uniquement si celles qui concernent l'isotope dans la bibliothèque sélectionnée sont nulles.

### III.2.2 Le module EDC

Le module EDC est utilisé pour calculer l'énergie émise par le combustible irradié, par décroissance radioactive. Il est nécessaire d'avoir généré une liste chaînée de type DECAY auparavant (via l'utilisation du module EQV par exemple). Par contre, il n'est pas nécessaire d'avoir généré concentrations isotopiques en fonction du temps via un module tel que EVO, le module calculera alors simplement le dégagement d'énergie des mélange contenues dans la MICROLIB.

L'appel de EDC se fait de la manière suivante :

TABLEAU III.7: Structure de EDC

$LDV := EDC : LDV \text{ MICNAM } [BRNNAM] :: (\text{descdec})$
---

où

<b>LDV</b>	character*12 nom de la liste chaînée issue de l'exécution du module EQV (type DECAY).
<b>MICNAM</b>	character*12 nom de la MICROLIB qui contient les données isotopiques.
<b>BRNNAM</b>	character*12 nom des données de structure BURNUP. Il contient les résultats des calculs d'évolution du module EVO. Ce mot clef est optionnel, s'il est absent, seul l'énergie résiduelle des mélanges de la bibliothèque MICROLIB est calculée.
<b>(descdec)</b>	Structure des données en entrée du module EDC (Voir ci dessous).

### III.2.2.1 Données d'entrée pour EDC

TABLEAU III.8: Structure de (descdec)

$[ \text{EDIT } iprt ]$ $[ \text{ONLYMIX } inbr \text{ NUMBERS } nbrs ] [ \text{ONLYTIME } inbr \text{ NUMBERS } nbrs ] ;$
---



où

EDIT Mot clef utilisé pour introduire *iprt*.

*iprt* Valeur de niveau d'édition.  
 $iprt < 5$  : édition minimale.  
 $5 \leq iprt < 10$  : édition incluant les contributions isotopique de chaque isotope dans le fichier de sortie.  
 $10 \leq iprt$  : édition incluant les contributions isotopique de chaque isotope dans le fichier de sortie et dans la liste chaînée de type /decay/.

ONLYMIX Mot clef utilisé pour activer l'option de sélection des mélanges.

*inbr* Indique le nombre de mélange que l'utilisateur veut considérer.

NUMBERS Mot clef introduisant les numéros des mélanges sélectionnés par l'utilisateur.

*nbrs* Liste des mélanges sélectionnés.  
Remarque : Le programme vérifiera que l'utilisateur a nommé autant de temps d'évolution dans *nbrs* qu'il en avait spécifié avec *inbr*. Il contrôlera aussi la présence ou non des mélanges demandés et qu'aucun n'est demandé deux fois.

ONLYTIME Mot clef utilisé pour activer l'option de selection des temps d'évolution.

*inbr* Indique le nombre de temps d'évolution que l'utilisateur veut considérer.

NUMBERS Mot clef introduisant les numéros des temps d'évolution sélectionnés par l'utilisateur.

*nbrs*

Liste des numéros associés aux temps d'évolution sélectionnés.

Remarque : Le programme vérifiera que l'utilisateur a nommé autant de temps d'évolution dans *nbrs* qu'il en avait spécifié avec *inbr*. Il contrôlera également que les numéros de temps d'évolution demandé n'exède pas le nombre disponible. Par contre, l'utilisateur peut demander plusieurs fois le même temps d'évolution.

## ANNEXE IV

### FICHIERS D'ENTRÉE

Nous avons présenter ici les extrait les plus pertinente des modification que nous avons effectué sur les fichiers d'entrée et les donnée d'énergie de décroissance utilisés pour nos calculs avec le logiciel DRAGON.

#### IV.1 Les données du fichier DV

TABLEAU IV.1: Énergie de décroissance radioactive utilisée pour nos calculs.

Isotope	Énergies par décroissance (MeV)					
	Q-value	Beta	Alpha	Autre (IT ou CE)	Gamma	Neutrino
$^{241}_{95}Am$	5,64E+00	0,00E+00	5,48E+00	0,00E+00	2,87E-02	1,29E-01
$^{242}_{95}Am$	6,78E-01	1,59E-01	0,00E+00	1,91E-02	1,80E-02	4,81E-01
$^{242}_{95}Am$ M	7,19E-02	0,00E+00	2,32E-02	4,03E-02	4,90E-03	3,50E-03
$^{243}_{95}Am$	5,44E+00	0,00E+00	5,27E+00	0,00E+00	4,81E-02	1,25E-01
$^{140}_{56}Ba$	1,03E+00	2,76E-01	0,00E+00	0,00E+00	1,83E-01	5,75E-01
$^{113}_{48}Cd$	3,16E-01	1,83E-01	0,00E+00	0,00E+00	7,10E-05	1,33E-01
$^{115}_{48}Cd$ M	1,62E+00	6,02E-01	0,00E+00	0,00E+00	3,29E-02	9,88E-01
$^{141}_{58}Ce$	5,81E-01	1,45E-01	0,00E+00	0,00E+00	7,70E-02	3,59E-01
$^{143}_{58}Ce$	1,46E+00	4,09E-01	0,00E+00	0,00E+00	2,74E-01	7,79E-01
$^{144}_{58}Ce$	3,19E-01	8,20E-02	0,00E+00	0,00E+00	1,92E-02	2,17E-01

Suite de la page précédente						
Isotope	Q-value	Beta	Alpha	Autre (IT ou CE)	Gamma	Neutrino
$^{242}_{96}\text{Cm}$	6,22E+00	0,00E+00	6,04E+00	0,00E+00	1,75E-03	1,70E-01
$^{243}_{96}\text{Cm}$	6,15E+00	0,00E+00	5,84E+00	0,00E+00	1,32E-01	1,83E-01
$^{244}_{96}\text{Cm}$	5,90E+00	0,00E+00	5,80E+00	0,00E+00	1,60E-03	1,04E-01
$^{134}_{55}\text{Cs}$	2,06E+00	1,09E-01	0,00E+00	0,00E+00	2,68E-02	1,92E+00
$^{135}_{55}\text{Cs}$	2,05E-01	5,60E-02	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00	1,49E-01
$^{137}_{55}\text{Cs}$	1,18E+00	1,88E-01	0,00E+00	0,00E+00	5,66E-01	4,21E-01
$^{152}_{63}\text{Eu}$	1,86E+00	8,30E-02	0,00E+00	4,45E-02	1,16E+00	5,72E-01
$^{154}_{63}\text{Eu}$	1,97E+00	2,27E-01	0,00E+00	0,00E+00	1,25E+00	4,89E-01
$^{155}_{63}\text{Eu}$	2,53E-01	4,71E-02	0,00E+00	0,00E+00	6,30E-02	1,43E-01
$^{156}_{63}\text{Eu}$	2,45E+00	3,95E-01	0,00E+00	0,00E+00	1,32E+00	7,34E-01
$^{152}_{64}\text{Gd}$	2,20E+00	0,00E+00	2,14E+00	0,00E+00	0,00E+00	6,22E-02
$^{129}_{53}\text{I}$	1,92E-01	4,15E-02	0,00E+00	0,00E+00	2,48E-02	1,26E-01
$^{131}_{53}\text{I}$	9,71E-01	1,82E-01	0,00E+00	0,00E+00	3,82E-01	4,07E-01
$^{132}_{53}\text{I}$	3,58E+00	4,86E-01	0,00E+00	0,00E+00	2,29E+00	8,04E-01
$^{135}_{53}\text{I}$	2,70E+00	3,58E-01	0,00E+00	0,00E+00	1,65E+00	6,91E-01
$^{115}_{49}\text{In}$	4,97E-01	1,53E-01	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00	3,44E-01
$^{85}_{36}\text{Kr}$	6,87E-01	2,51E-01	0,00E+00	0,00E+00	2,20E-03	4,34E-01
$^{138}_{57}\text{La}$	1,51E+00	2,38E-02	0,00E+00	4,68E-03	1,24E+00	2,48E-01
$^{140}_{57}\text{La}$	3,76E+00	5,25E-01	0,00E+00	0,00E+00	2,32E+00	9,21E-01
$^{94}_{41}\text{Nb}$	2,05E+00	1,46E-01	0,00E+00	0,00E+00	1,57E+00	3,28E-01
$^{95}_{41}\text{Nb}$	9,25E-01	4,35E-02	0,00E+00	0,00E+00	7,64E-01	1,17E-01
$^{144}_{60}\text{Nd}$	1,91E+00	0,00E+00	1,83E+00	0,00E+00	0,00E+00	7,70E-02
$^{147}_{60}\text{Nd}$	8,95E-01	2,33E-01	0,00E+00	0,00E+00	1,41E-01	5,21E-01
$^{237}_{93}\text{Np}$	4,96E+00	0,00E+00	4,76E+00	0,00E+00	3,27E-02	1,65E-01
$^{238}_{93}\text{Np}$	1,29E+00	1,90E-01	0,00E+00	0,00E+00	6,47E-01	4,54E-01
$^{239}_{93}\text{Np}$	7,32E-01	1,18E-01	0,00E+00	0,00E+00	1,74E-01	4,40E-01

Suite de la page précédente						
Isotope	Q-value	Beta	Alpha	Autre (IT ou CE)	Gamma	Neutrino
$^{233}_{60}Pa$	5,72E-01	6,40E-02	0,00E+00	0,00E+00	2,04E-01	3,04E-01
$^{107}_{46}Pd$	3,30E-02	9,30E-03	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00	2,37E-02
$^{147}_{61}Pm$	2,25E-01	6,20E-02	0,00E+00	0,00E+00	4,39E-06	1,63E-01
$^{148}_{61}Pm$	2,47E+00	7,22E-01	0,00E+00	0,00E+00	5,74E-01	1,18E+00
$^{148}_{61}Pm\ M$	2,50E+00	1,49E-01	0,00E+00	0,00E+00	1,99E+00	3,61E-01
$^{149}_{61}Pm$	1,07E+00	3,66E-01	0,00E+00	0,00E+00	1,07E-02	6,96E-01
$^{151}_{61}Pm$	1,19E+00	2,81E-01	0,00E+00	0,00E+00	3,21E-01	5,85E-01
$^{143}_{59}Pr$	9,35E-01	3,15E-01	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00	6,20E-01
$^{144}_{59}Pr$	3,00E+00	1,21E+00	0,00E+00	0,00E+00	2,89E-02	1,76E+00
$^{236}_{94}Pu$	5,87E+00	0,00E+00	5,75E+00	0,00E+00	2,00E-03	1,13E-01
$^{238}_{94}Pu$	5,59E+00	0,00E+00	5,49E+00	0,00E+00	1,76E-03	1,04E-01
$^{239}_{94}Pu$	5,24E+00	0,00E+00	5,10E+00	0,00E+00	6,60E-05	1,43E-01
$^{240}_{94}Pu$	5,26E+00	0,00E+00	5,15E+00	0,00E+00	2,86E-05	1,01E-01
$^{241}_{94}Pu$	2,21E-02	5,20E-03	1,18E-04	0,00E+00	1,35E-06	1,67E-02
$^{242}_{94}Pu$	4,98E+00	0,00E+00	4,89E+00	0,00E+00	1,39E-03	9,16E-02
$^{87}_{37}Rb$	2,82E-01	8,20E-02	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00	2,00E-01
$^{105}_{45}Rh$	5,66E-01	1,52E-01	0,00E+00	0,00E+00	7,70E-02	3,37E-01
$^{106}_{45}Rh$	3,54E+00	1,41E+00	0,00E+00	0,00E+00	2,06E-01	1,92E+00
$^{103}_{44}Ru$	7,66E-01	6,90E-02	0,00E+00	0,00E+00	4,85E-01	2,12E-01
$^{106}_{44}Ru$	3,94E-02	1,00E-02	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00	2,94E-02
$^{124}_{51}Sb$	2,91E+00	3,86E-01	0,00E+00	0,00E+00	1,85E+00	6,68E-01
$^{125}_{51}Sb$	7,67E-01	8,60E-02	0,00E+00	0,00E+00	4,43E-01	2,38E-01
$^{79}_{34}Se$	1,51E-01	5,30E-02	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00	9,79E-02
$^{147}_{62}Sm$	2,31E+00	0,00E+00	2,23E+00	0,00E+00	0,00E+00	7,79E-02
$^{148}_{62}Sm$	1,99E+00	0,00E+00	1,96E+00	0,00E+00	0,00E+00	2,62E-02
$^{151}_{62}Sm$	7,63E-02	1,25E-01	0,00E+00	0,00E+00	1,31E-04	0,00E+00

Suite de la page précédente						
Isotope	Q-value	Beta	Alpha	Autre (IT ou CE)	Gamma	Neutrino
$^{121}_{50}\text{Sn M}$	3,89E-01	2,72E-02	0,00E+00	0,00E+00	5,00E-03	3,57E-01
$^{123}_{50}\text{Sn}$	1,40E+00	5,23E-01	0,00E+00	0,00E+00	6,90E-03	8,73E-01
$^{126}_{50}\text{Sn}$	3,78E-01	7,00E-02	0,00E+00	0,00E+00	5,70E-02	2,51E-01
$^{89}_{38}\text{Sr}$	1,49E+00	5,83E-01	0,00E+00	0,00E+00	8,60E-05	9,09E-01
$^{90}_{38}\text{Sr}$	5,46E-01	1,96E-01	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00	3,50E-01
$^{91}_{38}\text{Sr}$	2,69E+00	6,48E-01	0,00E+00	0,00E+00	1,05E+00	9,91E-01
$^{160}_{65}\text{Tb}$	1,84E+00	2,04E-01	0,00E+00	0,00E+00	1,13E+00	5,05E-01
$^{100}_{43}\text{Tc}$	3,20E+00	1,32E-01	0,00E+00	0,00E+00	8,50E-02	2,99E+00
$^{99}_{43}\text{Tc}$	2,94E-01	8,50E-02	0,00E+00	0,00E+00	8,97E-02	1,19E-01
$^{127}_{52}\text{Te M}$	1,05E+00	6,10E-03	0,00E+00	0,00E+00	1,11E-02	1,03E+00
$^{129}_{52}\text{Te M}$	6,45E-01	2,06E-01	0,00E+00	0,00E+00	3,70E-02	4,02E-01
$^{132}_{52}\text{Te}$	4,93E-01	5,90E-02	0,00E+00	0,00E+00	2,34E-01	2,00E-01
$^{232}_{90}\text{Th}$	4,08E+00	0,00E+00	4,01E+00	0,00E+00	1,70E-04	7,78E-02
$^{233}_{92}\text{U}$	4,91E+00	0,00E+00	4,81E+00	0,00E+00	1,29E-03	9,38E-02
$^{234}_{92}\text{U}$	4,86E+00	0,00E+00	4,77E+00	0,00E+00	1,13E-04	8,54E-02
$^{235}_{92}\text{U}$	4,68E+00	0,00E+00	4,38E+00	0,00E+00	1,56E-01	1,45E-01
$^{236}_{92}\text{U}$	4,57E+00	0,00E+00	4,48E+00	0,00E+00	1,50E-03	9,19E-02
$^{237}_{92}\text{U}$	5,19E-01	6,60E-02	0,00E+00	0,00E+00	1,44E-01	3,09E-01
$^{238}_{92}\text{U}$	4,27E+00	0,00E+00	4,19E+00	0,00E+00	1,30E-03	7,87E-02
$^{133}_{54}\text{Xe}$	4,27E-01	1,00E-01	0,00E+00	0,00E+00	4,59E-02	2,81E-01
$^{135}_{54}\text{Xe}$	1,16E+00	3,03E-01	0,00E+00	0,00E+00	2,49E-01	6,08E-01
$^{90}_{39}\text{Y}$	2,28E+00	9,34E-01	0,00E+00	0,00E+00	3,10E-06	1,35E+00
$^{91}_{39}\text{Y}$	1,55E+00	6,03E-01	0,00E+00	0,00E+00	3,00E-03	9,40E-01
$^{93}_{40}\text{Zr}$	9,05E-02	1,90E-02	0,00E+00	0,00E+00	1,84E-03	6,97E-02
$^{95}_{40}\text{Zr}$	1,12E+00	1,17E-01	0,00E+00	0,00E+00	7,33E-01	2,74E-01

TABLEAU IV.2: Ratio de décroissance radioactive utilisée pour nos calculs.

	Ratio (%)				Ratio (%)		
Isotope	Alpha	Beta	Autre		Alpha	Beta	Autre
$^{241}_{95}Am$	0	100	0	$^{144}_{59}Pr$	100	0	0
$^{242}_{95}Am$	82,7	0	17,3	$^{236}_{94}Pu$	0	100	0
$^{242}_{95}Am$ M	0	0,45	99,6	$^{238}_{94}Pu$	0	100	0
$^{243}_{95}Am$	0	100	0	$^{239}_{94}Pu$	0	100	0
$^{140}_{56}Ba$	100	0	0	$^{240}_{94}Pu$	0	100	0
$^{113}_{48}Cd$	100	0	0	$^{241}_{94}Pu$	99,9	0,01	0
$^{115}_{48}Cd$ M	100	0	0	$^{242}_{94}Pu$	0	100	0
$^{141}_{58}Ce$	100	0	0	$^{87}_{37}Rb$	100	0	0
$^{143}_{58}Ce$	100	0	0	$^{105}_{45}Rh$	100	0	0
$^{144}_{58}Ce$	100	0	0	$^{106}_{45}Rh$	100	0	0
$^{242}_{96}Cm$	0	100	0	$^{103}_{44}Ru$	100	0	0
$^{243}_{96}Cm$	0	0	0	$^{106}_{44}Ru$	100	0	0
$^{244}_{96}Cm$	0	100	0	$^{124}_{51}Sb$	100	0	0
$^{134}_{55}Cs$	100	0	0	$^{125}_{51}Sb$	100	0	0
$^{135}_{55}Cs$	100	0	0	$^{79}_{34}Se$	100	0	0
$^{137}_{55}Cs$	100	0	0	$^{147}_{62}Sm$	0	100	0
$^{152}_{63}Eu$	27,9	0	72,1	$^{148}_{62}Sm$	0	100	0
$^{154}_{63}Eu$	100	0	0	$^{151}_{62}Sm$	100	0	0
$^{155}_{63}Eu$	100	0	0	$^{121}_{50}Sn$ M	100	0	0
$^{156}_{63}Eu$	100	0	0	$^{123}_{50}Sn$	100	0	0
$^{152}_{64}Gd$	0	100	0	$^{126}_{50}Sn$	100	0	0
$^{129}_{53}I$	100	0	0	$^{89}_{38}Sr$	100	0	0
$^{131}_{53}I$	100	0	0	$^{90}_{38}Sr$	100	0	0

Suite de la page précédente							
	Ratio (%)				Ratio (%)		
Isotope	Alpha	Beta	Autre		Alpha	Beta	Autre
$^{132}_{53}I$	100	0	0	$^{91}_{38}Sr$	100	0	0
$^{135}_{53}I$	100	0	0	$^{160}_{65}Tb$	100	0	0
$^{115}_{49}In$	100	0	0	$^{100}_{43}Tc$	100	0	0
$^{85}_{36}Kr$	100	0	0	$^{99}_{43}Tc$	100	0	0
$^{138}_{57}La$	33	0	67	$^{127}_{52}Te M$	100	0	0
$^{140}_{57}La$	100	0	0	$^{129}_{52}Te M$	100	0	0
$^{94}_{41}Nb$	100	0	0	$^{132}_{52}Te$	100	0	0
$^{95}_{41}Nb$	100	0	0	$^{232}_{90}Th$	0	100	0
$^{144}_{60}Nd$	0	100	0	$^{233}_{92}U$	0	100	0
$^{147}_{60}Nd$	100	0	0	$^{234}_{92}U$	0	100	0
$^{237}_{93}Np$	0	100	0	$^{235}_{92}U$	0	100	0
$^{238}_{93}Np$	100	0	0	$^{236}_{92}U$	0	100	0
$^{239}_{93}Np$	100	0	0	$^{237}_{92}U$	100	0	0
$^{233}_{60}Pa$	100	0	0	$^{238}_{92}U$	0	100	0
$^{107}_{46}Pd$	100	0	0	$^{133}_{54}Xe$	100	0	0
$^{147}_{61}Pm$	100	0	0	$^{135}_{54}Xe$	100	0	0
$^{148}_{61}Pm$	100	0	0	$^{90}_{39}Y$	100	0	0
$^{148}_{61}Pm M$	100	0	0	$^{91}_{39}Y$	100	0	0
$^{149}_{61}Pm$	100	0	0	$^{93}_{40}Zr$	100	0	0
$^{151}_{61}Pm$	100	0	0	$^{95}_{40}Zr$	100	0	0
$^{143}_{59}Pr$	100	0	0				



## IV.2 Le fichier MicE6M

Nous n'avons jugé pertinent que de présenter ici l'appel de la fonction LIB qui génère la chaîne de décroissance, que nous avons modifié pour intégrer différents isotopes supplémentaires, et les mixtures de combustible.

```

*-----
*  produire la MicLib requise
*  1) Le combustible
*-----
MicLib  := LIB:  ::
  EDIT 50
  NMIX 28  CTRA WIMS
*****MODIF*****
  PDEPLCH  DEPL          98  !Anciennement 74
*DEPL          98
**  DEPL LIB: WIMS FIL: <<LibName>>
CHAIN
*****Donnee de depart****
'AM243'          1          NG
              DECAY  2.976300E-04      FISSION  2.145877E+02
FROM
              NG          1.000000E+00      'PU242'
              NG          1.000000E+00      'AM242M'
'AM242M'          2          NG
              DECAY  1.445100E-02      FISSION  2.145514E+02
FROM
              NG          1.105000E-01      'AM241'
'AM241'          3          NG
              DECAY  5.082100E-03      FISSION  2.144768E+02
FROM
              DECAY          1.000000E+00      'PU241'
'PU242'          4          NG
              DECAY  5.837000E-06      FISSION  2.096014E+02
FROM
              NG          1.000000E+00      'PU241'
'PU241'          5          NG
              DECAY  1.494200E-01      FISSION  2.136881E+02
FROM
              NG          1.000000E+00      'PU240'
'PU240'          6          NG
              DECAY  3.353400E-04      FISSION  2.075596E+02
FROM

```

		NG	1.000000E+00		'NP239'
		NG	1.000000E+00		'PU239'
'PU239'	7	NG			
	DECAY	9.110301E-05		FISSION	2.112493E+02
	FROM				
	DECAY	1.000000E+00			'NP239'
	NG	1.000000E+00			'PU238'
'PU238'	8	NG			
	DECAY	2.503000E-02		FISSION	2.023350E+02
	FROM				
	DECAY	1.000000E+00			'NP238'
'PU236'	9	NG			
	DECAY	7.709000E-01		FISSION	2.023349E+02
	FROM				
	N2N	1.000000E+00			'NP237'
'NP239'	10	NG			
	DECAY	3.408000E+02		FISSION	2.112379E+02
	FROM				
	DECAY	1.000000E+00			'AM243'
	NG	1.000000E+00			'U238NF'
	NG	1.000000E+00			'U238'
	NG	1.000000E+00			'NP238'
'NP238'	11	NG			
	DECAY	3.790000E+02		FISSION	2.023350E+02
	FROM				
	NG	1.000000E+00			'NP237'
'NP237'	12	NG	N2N		
	DECAY	1.026000E-06		FISSION	2.023350E+02
	FROM				
	DECAY	1.000000E+00			'AM241'
	NG	1.000000E+00			'U236'
	N2N	1.000000E+00			'U238NF'
	N2N	1.000000E+00			'U238'
'U238'	13	NG	N2N		
	DECAY	4.915600E-10		FISSION	2.044773E+02
'U238NF'	14	NG	N2N		
	DECAY	4.915600E-10		FISSION	2.044773E+02
'U236'	15	NG			
	DECAY	9.380700E-08		FISSION	2.023350E+02
	FROM				
	DECAY	1.000000E+00			'PU240'
	NG	1.000000E+00			'U235'
'U235'	16	NG	N2N		
	DECAY	3.120900E-09		FISSION	2.023452E+02
	FROM				
	DECAY	1.000000E+00			'PU239'
	NG	1.000000E+00			'U234'
'U234'	17	NG	N2N		

	DECAY	8.979999E-06	FISSION	1.975787E+02
FROM				
	NG	1.000000E+00	'PA233'	
	NG	1.000000E+00	'U233'	
	N2N	1.000000E+00	'U235'	
'U233'	18	NG	N2N	
	DECAY	1.379900E-05	FISSION	1.999937E+02
FROM				
	DECAY	1.000000E+00	'PA233'	
	N2N	1.000000E+00	'U234'	
'PA233'	19	NG		
	DECAY	2.971300E+01	FISSION	1.949265E+02
FROM				
	DECAY	1.000000E+00	'NP237'	
	NG	1.000000E+00	'TH232'	
'TH232'	20	NG		
	DECAY	1.563400E-10	FISSION	1.916027E+02
FROM				
	DECAY	1.000000E+00	'U233'	
'PFP2'	21	NG		
FROM				
	FISSION	1.600000E-01	'PU241'	
	FISSION	1.800000E-01	'PU239'	
	FISSION	1.600000E-01	'U238'	
	FISSION	1.600000E-01	'U238NF'	
	FISSION	1.600000E-01	'U235'	
	FISSION	1.600000E-01	'U233'	
'PFP'	22	NG		
FROM				
	FISSION	1.200000E-03	'PU241'	
	FISSION	1.200000E-03	'PU239'	
	FISSION	1.200000E-03	'U238'	
	FISSION	1.200000E-03	'U238NF'	
	FISSION	1.200000E-03	'U235'	
	FISSION	1.200000E-03	'U233'	
'GD157'	23	NG		
FROM				
	NG	1.000000E+00	'EU156'	
	FISSION	7.629680E-04	'PU241'	
	FISSION	7.629680E-04	'PU239'	
	FISSION	3.771477E-04	'U238'	
	FISSION	3.771477E-04	'U238NF'	
	FISSION	6.465092E-05	'U235'	
	FISSION	6.776055E-05	'U233'	
'EU156'	24	NG		
	DECAY	5.281545E+01		
FROM				
	NG	1.000000E+00	'EU155'	

	FISSION	1.198851E-03	'PU241'
	FISSION	1.198851E-03	'PU239'
	FISSION	6.907468E-04	'U238'
	FISSION	6.907468E-04	'U238NF'
	FISSION	1.351658E-04	'U235'
	FISSION	1.300000E-04	'U233'
'EU155'	25	NG	
	DECAY	4.428224E-01	
	FROM		
	NG	1.000000E+00	'EU154'
	FISSION	1.708194E-03	'PU241'
	FISSION	1.708194E-03	'PU239'
	FISSION	1.325251E-03	'U238'
	FISSION	1.325251E-03	'U238NF'
	FISSION	3.302543E-04	'U235'
	FISSION	2.121573E-04	'U233'
'EU154'	26	NG	
	DECAY	2.553979E-01	
	FROM		
	NG	1.000000E+00	'EU153'
	FISSION	3.540000E-07	'PU241'
	FISSION	3.540000E-07	'PU239'
	FISSION	8.734623E-11	'U238'
	FISSION	8.734623E-11	'U238NF'
	FISSION	1.630000E-08	'U235'
	FISSION	3.720000E-04	'U233'
'EU153'	27	NG	
	FROM		
	NG	1.000000E+00	'SM152'
	FISSION	3.722426E-03	'PU241'
	FISSION	3.722426E-03	'PU239'
	FISSION	4.119132E-03	'U238'
	FISSION	4.119132E-03	'U238NF'
	FISSION	1.626412E-03	'U235'
	FISSION	1.067647E-03	'U233'
'SM152'	28	NG	
	FROM		
	NG	1.000000E+00	'SM151'
	FISSION	5.961799E-03	'PU241'
	FISSION	5.961800E-03	'PU239'
	FISSION	5.571750E-03	'U238'
	FISSION	5.571750E-03	'U238NF'
	FISSION	2.705742E-03	'U235'
	FISSION	2.073942E-03	'U233'
'SM151'	29	NG	
	FROM		
	DECAY	1.000000E+00	'PM151'
	NG	1.000000E+00	'SM150'

	FISSION	2.620000E-07	'PU241'
	FISSION	2.620000E-07	'PU239'
	FISSION	2.739496E-10	'U238'
	FISSION	2.739496E-10	'U238NF'
	FISSION	3.970000E-08	'U235'
	FISSION	8.360001E-07	'U233'
'SM150'	30	NG	
	FROM		
	NG	1.000000E+00	'PM149'
	NG	1.000000E+00	'SM149'
	FISSION	1.700880E-05	'PU241'
	FISSION	1.700881E-05	'PU239'
	FISSION	5.970492E-08	'U238'
	FISSION	5.970492E-08	'U238NF'
	FISSION	5.413017E-06	'U235'
	FISSION	2.575310E-05	'U233'
'SM149'	31	NG	
	FROM		
	DECAY	1.000000E+00	'PM149'
	FISSION	1.929042E-10	'PU241'
	FISSION	1.928625E-10	'PU239'
	FISSION	2.977712E-14	'U238'
	FISSION	2.977712E-14	'U238NF'
	FISSION	6.714371E-11	'U235'
	FISSION	2.976167E-09	'U233'
'SM147'	32	NG	
	FROM		
	DECAY	1.000000E+00	'PM147'
	FISSION	2.428794E-14	'PU241'
	FISSION	2.428269E-14	'PU239'
	FISSION	2.007414E-12	'U233'
'PM151'	33	NG	
	DECAY	6.779636E+02	
	FROM		
	FISSION	7.771739E-03	'PU241'
	FISSION	7.771740E-03	'PU239'
	FISSION	8.539826E-03	'U238'
	FISSION	8.539826E-03	'U238NF'
	FISSION	4.204399E-03	'U235'
	FISSION	3.225374E-03	'U233'
'PM149'	34	NG	
	DECAY	3.627348E+02	
	FROM		
	NG	1.000000E+00	'ND148'
	NG	1.000000E+00	'PM148'
	NG	1.000000E+00	'PM148M'
	FISSION	1.261737E-02	'PU241'
	FISSION	1.261737E-02	'PU239'

	FISSION	1.762368E-02	'U238'
	FISSION	1.762368E-02	'U238NF'
	FISSION	1.088833E-02	'U235'
	FISSION	7.696058E-03	'U233'
'PM148M'	35	NG	
	DECAY	9.518358E-01	
	FROM		
	NG	4.720000E-01	'PM147'
	FISSION	2.090000E-08	'PU241'
	FISSION	2.090000E-08	'PU239'
	FISSION	1.181159E-11	'U238'
	FISSION	1.181159E-11	'U238NF'
	FISSION	7.483727E-09	'U235'
	FISSION	2.790000E-07	'U233'
'PM148'	36	NG	
	DECAY	1.493954E+02	
	FROM		
	NG	5.280000E-01	'PM147'
	DECAY	1.000000E+00	'PM148M'
	FISSION	2.090000E-08	'PU241'
	FISSION	2.090000E-08	'PU239'
	FISSION	1.181159E-11	'U238'
	FISSION	1.181159E-11	'U238NF'
	FISSION	5.730000E-08	'U235'
	FISSION	9.467806E-09	'U233'
'PM147'	37	NG	
	DECAY	8.372590E-01	
	FROM		
	DECAY	1.000000E+00	'ND147'
	FISSION	2.218898E-09	'PU241'
	FISSION	2.218419E-09	'PU239'
	FISSION	2.352393E-13	'U238'
	FISSION	2.352393E-13	'U238NF'
	FISSION	4.036615E-10	'U235'
	FISSION	3.310000E-08	'U233'
'ND148'	38	NG	
	FROM		
	NG	1.000000E+00	'ND147'
	FISSION	1.698197E-02	'PU241'
	FISSION	1.698197E-02	'PU239'
	FISSION	2.261151E-02	'U238'
	FISSION	2.261151E-02	'U238NF'
	FISSION	1.690027E-02	'U235'
	FISSION	1.287085E-02	'U233'
'ND147'	39	NG	
	DECAY	7.253710E+01	
	FROM		
	NG	1.000000E+00	'ND146'

	FISSION	2.076863E-02	'PU241'
	FISSION	2.076863E-02	'PU239'
	FISSION	2.712939E-02	'U238'
	FISSION	2.712939E-02	'U238NF'
	FISSION	2.270106E-02	'U235'
	FISSION	1.772701E-02	'U233'
'ND146'	40	NG	
	FROM		
	NG	1.000000E+00	'ND145'
	FISSION	2.533293E-02	'PU241'
	FISSION	2.533294E-02	'PU239'
	FISSION	3.612909E-02	'U238'
	FISSION	3.612909E-02	'U238NF'
	FISSION	2.991215E-02	'U235'
	FISSION	2.542313E-02	'U233'
'ND145'	41	NG	
	FROM		
*	NG	1.000000E+00	'CE144'
	NG	1.000000E+00	'PR144'
	NG	1.000000E+00	'ND144'
	FISSION	3.083251E-02	'PU241'
	FISSION	3.083251E-02	'PU239'
	FISSION	4.000485E-02	'U238'
	FISSION	4.000485E-02	'U238NF'
	FISSION	3.933933E-02	'U235'
	FISSION	3.361221E-02	'U233'
'ND144'	42	NG	
	FROM		
	DECAY	1.000000E+00	'CE144'
	DECAY	1.000000E+00	'PR144'
	NG	1.000000E+00	'PR143'
	NG	1.000000E+00	'ND143'
	FISSION	3.106870E-06	'PU241'
	FISSION	3.106870E-06	'PU239'
	FISSION	2.727087E-07	'U238'
	FISSION	2.727087E-07	'U238NF'
	FISSION	1.066300E-05	'U235'
	FISSION	1.525400E-05	'U233'
'ND143'	43	NG	
	FROM		
	DECAY	1.000000E+00	'PR143'
	FISSION	4.897568E-12	'PU241'
	FISSION	4.896509E-12	'PU239'
	FISSION	9.492043E-13	'U235'
	FISSION	2.476810E-10	'U233'
'PR143'	44	NG	
	DECAY	5.916268E+01	
	FROM		

	DECAY	1.000000E+00	'CE143'
'PR141'	45	NG	
	FROM		
	DECAY	1.000000E+00	'CE141'
	FISSION	4.807613E-11	'PU241'
	FISSION	4.806574E-11	'PU239'
	FISSION	2.650164E-12	'U238'
	FISSION	2.650164E-12	'U238NF'
	FISSION	7.413787E-12	'U235'
	FISSION	1.398199E-09	'U233'
'CE144'	46	NG	
	DECAY	2.821812E+00	
	FROM		
	FISSION	3.833640E-02	'PU241'
	FISSION	3.833640E-02	'PU239'
	FISSION	4.756387E-02	'U238'
	FISSION	4.756387E-02	'U238NF'
	FISSION	5.451243E-02	'U235'
	FISSION	4.653842E-02	'U233'
'CE142'	47	NG	
	FROM		
	NG	1.000000E+00	'CE141'
	FISSION	5.017347E-02	'PU241'
	FISSION	5.017347E-02	'PU239'
	FISSION	4.934972E-02	'U238'
	FISSION	4.934972E-02	'U238NF'
	FISSION	5.924728E-02	'U235'
	FISSION	6.634474E-02	'U233'
'CE141'	48	NG	
	DECAY	2.467692E+01	
	FROM		
	FISSION	5.363421E-02	'PU241'
	FISSION	5.363421E-02	'PU239'
	FISSION	5.144964E-02	'U238'
	FISSION	5.144964E-02	'U238NF'
	FISSION	5.892868E-02	'U235'
	FISSION	6.616250E-02	'U233'
'LA139'	49	NG	
	FROM		
	FISSION	5.645569E-02	'PU241'
	FISSION	5.645570E-02	'PU239'
	FISSION	6.117047E-02	'U238'
	FISSION	6.117047E-02	'U238NF'
	FISSION	6.493284E-02	'U235'
	FISSION	6.382190E-02	'U233'
'CS135'	50	NG	
	DECAY	9.556327E-07	
	FROM		



	DECAY	1.000000E+00	'XE135'
	NG	1.000000E+00	'CS134'
	FISSION	4.290000E-05	'PU241'
	FISSION	4.290000E-05	'PU239'
	FISSION	3.010000E-08	'U238'
	FISSION	3.010000E-08	'U238NF'
	FISSION	8.309999E-06	'U235'
	FISSION	1.050000E-04	'U233'
'CS134'	51	NG	
	DECAY	1.065205E+00	
FROM			
	NG	1.000000E+00	'CS133'
	FISSION	4.609999E-06	'PU241'
	FISSION	4.609999E-06	'PU239'
	FISSION	1.827323E-09	'U238'
	FISSION	1.827323E-09	'U238NF'
	FISSION	3.570000E-07	'U235'
	FISSION	1.197000E-05	'U233'
'CS133'	52	NG	
FROM			
	DECAY	1.000000E+00	'XE133'
	FISSION	1.610000E-07	'PU241'
	FISSION	1.610000E-07	'PU239'
	FISSION	1.280416E-11	'U238'
	FISSION	1.280416E-11	'U238NF'
	FISSION	5.080000E-07	'U235'
	FISSION	3.700000E-07	'U233'
'XE135'	53	NG	
	DECAY	2.118170E+03	
FROM			
	DECAY	1.000000E+00	'I135'
	FISSION	4.759999E-03	'PU241'
	FISSION	4.760000E-03	'PU239'
	FISSION	8.510000E-05	'U238'
	FISSION	8.510000E-05	'U238NF'
	FISSION	9.310000E-04	'U235'
	FISSION	5.390000E-03	'U233'
'XE133'	54	NG	
	DECAY	1.529558E+02	
FROM			
	FISSION	6.975771E-02	'PU241'
	FISSION	6.975771E-02	'PU239'
	FISSION	6.354803E-02	'U238'
	FISSION	6.354803E-02	'U238NF'
	FISSION	6.785948E-02	'U235'
	FISSION	6.034945E-02	'U233'
'XE131'	55	NG	
FROM			

	DECAY	1.000000E+00	'I131'
*	FISSION	3.738031E-02	'PU241'
*	FISSION	3.860000E-02	'PU239'
*	FISSION	3.216118E-02	'U238'
*	FISSION	3.216118E-02	'U238NF'
*	FISSION	2.890000E-02	'U235'
*	FISSION	3.613908E-02	'U233'
'I135'	56	NG	
	DECAY	2.912885E+03	
	FROM		
	FISSION	6.300707E-02	'PU241'
	FISSION	6.300708E-02	'PU239'
	FISSION	6.548901E-02	'U238'
	FISSION	6.548901E-02	'U238NF'
	FISSION	6.348240E-02	'U235'
	FISSION	4.864721E-02	'U233'
'I129'	57	NG	
	DECAY	1.399971E-07	
	FROM		
	FISSION	1.503855E-02	'PU241'
	FISSION	1.503855E-02	'PU239'
	FISSION	1.111397E-02	'U238'
	FISSION	1.111397E-02	'U238NF'
	FISSION	6.591115E-03	'U235'
	FISSION	1.615553E-02	'U233'
'IN115'	58	NG	
	FROM		
	FISSION	3.567818E-04	'PU241'
	FISSION	3.567818E-04	'PU239'
	FISSION	4.071112E-04	'U238'
	FISSION	4.071112E-04	'U238NF'
	FISSION	9.958610E-05	'U235'
	FISSION	1.082729E-04	'U233'
'CD113'	59	NG	
	FROM		
	FISSION	7.694346E-04	'PU241'
	FISSION	7.694347E-04	'PU239'
	FISSION	4.675637E-04	'U238'
	FISSION	4.675637E-04	'U238NF'
	FISSION	1.215068E-04	'U235'
	FISSION	1.293937E-04	'U233'
'AG109'	60	NG	
	FROM		
	NG	1.000000E+00	'PD108'
	FISSION	1.411510E-02	'PU241'
	FISSION	1.411510E-02	'PU239'
	FISSION	2.833995E-03	'U238'
	FISSION	2.833995E-03	'U238NF'

		FISSION	2.990317E-04	'U235'
		FISSION	4.338927E-04	'U233'
'PD108'	61	NG		
	FROM			
		NG	1.000000E+00	'PD107'
		FISSION	2.231898E-02	'PU241'
		FISSION	2.231898E-02	'PU239'
		FISSION	6.229809E-03	'U238'
		FISSION	6.229809E-03	'U238NF'
		FISSION	7.103232E-04	'U235'
		FISSION	6.149262E-04	'U233'
'PD107'	62	NG		
	FROM			
		FISSION	3.236055E-02	'PU241'
		FISSION	3.236056E-02	'PU239'
		FISSION	1.271625E-02	'U238'
		FISSION	1.271625E-02	'U238NF'
		FISSION	1.631686E-03	'U235'
		FISSION	1.141542E-03	'U233'
'PD105'	63	NG		
	FROM			
		DECAY	1.000000E+00	'RH105'
		FISSION	2.028992E-10	'PU241'
		FISSION	2.028554E-10	'PU239'
		FISSION	5.789999E-06	'U238'
		FISSION	5.789999E-06	'U238NF'
		FISSION	9.821768E-13	'U235'
		FISSION	3.495498E-13	'U233'
'RH105'	64	NG		
	DECAY	5.445012E+02		
	FROM			
		FISSION	5.426139E-02	'PU241'
		FISSION	5.426139E-02	'PU239'
		FISSION	4.206506E-02	'U238'
		FISSION	4.206506E-02	'U238NF'
		FISSION	1.019899E-02	'U235'
		FISSION	4.711844E-03	'U233'
'RH103'	65	NG		
	FROM			
		DECAY	1.000000E+00	'RU103'
		FISSION	6.786630E-10	'PU241'
		FISSION	6.785162E-10	'PU239'
		FISSION	1.875959E-13	'U238'
		FISSION	1.875959E-13	'U238NF'
		FISSION	9.282218E-12	'U235'
		FISSION	7.100853E-12	'U233'
'RU103'	66	NG		
	DECAY	2.042401E+01		

	FROM			
		NG	1.000000E+00	'RU102'
		FISSION	6.984495E-02	'PU241'
		FISSION	6.984495E-02	'PU239'
		FISSION	6.329051E-02	'U238'
		FISSION	6.329051E-02	'U238NF'
		FISSION	3.141104E-02	'U235'
		FISSION	1.706669E-02	'U233'
'RU102'	67	NG		
	FROM			
		NG	1.000000E+00	'RU101'
		FISSION	6.020067E-02	'PU241'
		FISSION	6.020068E-02	'PU239'
		FISSION	6.799258E-02	'U238'
		FISSION	6.799258E-02	'U238NF'
		FISSION	4.203198E-02	'U235'
		FISSION	2.446305E-02	'U233'
'RU101'	68	NG		
	FROM			
		NG	1.000000E+00	'MO100'
		FISSION	5.913492E-02	'PU241'
		FISSION	5.913493E-02	'PU239'
		FISSION	6.577708E-02	'U238'
		FISSION	6.577708E-02	'U238NF'
		FISSION	5.050125E-02	'U235'
		FISSION	3.224389E-02	'U233'
'TC99'	69	NG		
	FROM			
		DECAY	1.000000E+00	'MO99'
*		FISSION	6.140546E-02	'PU241'
*		FISSION	6.140545E-02	'PU239'
*		FISSION	6.251621E-02	'U238'
*		FISSION	6.251621E-02	'U238NF'
*		FISSION	6.128369E-02	'U235'
*		FISSION	4.959734E-02	'U233'
'MO100'	70	NG		
	FROM			
		FISSION	6.977031E-02	'PU241'
		FISSION	6.977031E-02	'PU239'
		FISSION	6.132741E-02	'U238'
		FISSION	6.132741E-02	'U238NF'
		FISSION	6.309615E-02	'U235'
		FISSION	4.404730E-02	'U233'
'MO97'	71	NG		
	FROM			
		FISSION	5.607986E-02	'PU241'
		FISSION	5.607987E-02	'PU239'
		FISSION	5.526119E-02	'U238'

```

          FISSION      5.526119E-02      'U238NF'
          FISSION      5.959982E-02      'U235'
          FISSION      5.462003E-02      'U233'
'MO95'      72      NG
          FROM
          DECAT      1.000000E+00      'NB95'
*          FISSION      4.922682E-02      'PU241'
*          FISSION      4.922682E-02      'PU239'
*          FISSION      5.328328E-02      'U238'
*          FISSION      5.328328E-02      'U238NF'
*          FISSION      6.467929E-02      'U235'
*          FISSION      6.255553E-02      'U233'
'ZR93'      73      NG
          FROM
          FISSION      3.903101E-02      'PU241'
          FISSION      3.903101E-02      'PU239'
          FISSION      4.837317E-02      'U238'
          FISSION      4.837317E-02      'U238NF'
          FISSION      6.370320E-02      'U235'
          FISSION      7.007008E-02      'U233'
'KR83'      74      NG
          FROM
          FISSION      2.960833E-03      'PU241'
          FISSION      2.960833E-03      'PU239'
          FISSION      3.763077E-03      'U238'
          FISSION      3.763077E-03      'U238NF'
          FISSION      5.307610E-03      'U235'
          FISSION      1.017616E-02      'U233'
*****
** Ajout **
*****
***PR144***
'PR144'      75      NG
          DECAT      6.685450E+04 !Valeur ici donnee par livre gris
          FROM
          DECAT      1.000000E+00      'CE144'      !CE144
          FISSION      4.230000E-02      'PU241'      !PU241
          FISSION      3.740000E-02      'PU239'      !PU239
          FISSION      5.500000E-02      'U235'      !U235
***CE143***
'CE143'      76      NG
          DECAT      5.827685E+02
          FROM
          NG      1.000000E+00      'CE142'
          FISSION      4.561321E-02      'PU241'
          FISSION      4.561321E-02      'PU239'
          FISSION      4.833756E-02      'U238'
          FISSION      4.833756E-02      'U238NF'

```

```

          FISSION      5.970991E-02      'U235'
          FISSION      5.881484E-02      'U233'
***BA140***
'BA140'          77          NG
          DECAY      6.291200E+01 !Valeur ici donnee par livre gris
FROM
          FISSION      5.770000E-02      'PU241'      !PU241
          FISSION      5.350000E-02      'PU239'      !PU239
          FISSION      6.210000E-02      'U235'      !U235
          FISSION      6.400000E-02      'U233'      !U233
***LA140***
'LA140'          78          NG
          DECAY      4.780730E+02 !Valeur ici donnee par livre gris
FROM
          DECAY      1.000000E+00      'BA140'      !BA140
***CE140***
* Faut il mettre les isotope de fin de chaine??
'CE140'          79          NG
FROM
          DECAY      1.000000E+00      'LA140'      !LA140
***CS137***
'CS137'          80          NG
          DECAY      7.309460E-02 !Valeur ici donnee par livre gris
FROM
          FISSION      6.650000E-02      'PU241'      !PU241
          FISSION      6.610000E-02      'PU239'      !PU239
          FISSION      6.190000E-02      'U235'      !U235
          FISSION      6.760000E-02      'U233'      !U233
***BA137***
'BA137'          81          NG
FROM
          DECAY      1.000000E+00      'CS137'      !CS137
***TE132***
'TE132'          82          NG
          DECAY      2.503913E+02
FROM
          FISSION      5.410000E-02      'PU241'
          FISSION      5.410000E-02      'PU239'
          FISSION      4.310000E-02      'U235'
          FISSION      4.950000E-02      'U233'
***I132***
'I132'          83          NG
          DECAY      8.389580E+03
FROM
          DECAY      1.000000E+00      'TE132'
***I131***
'I131'          84          NG
          DECAY      1.000229E+02

```

```

FROM
    FISSION      3.738031E-02      'PU241'
    FISSION      3.860000E-02      'PU239'
    FISSION      3.216118E-02      'U238'
    FISSION      3.216118E-02      'U238NF'
    FISSION      2.890000E-02      'U235'
    FISSION      3.613908E-02      'U233'

***RU106***
'RU106'          85          NG
DECAY  2.147420E+00 !Valeur ici donnee par livre gris
FROM
    FISSION      6.100000E-02      'PU241'      !PU241
    FISSION      4.350000E-02      'PU239'      !PU239
    FISSION      0.400000E-02      'U235'      !U235

***RH106***
'RH106'          86          NG
DECAY  2.326000E+06 !Valeur ici donnee par livre gris
FROM
    DECAy        1.000000E+00      'RU106'      !RU106

***PD106***
* Faut il mettre les isotope de fin de chaine??
'PD106'          87          NG
FROM
    DECAy        1.000000E+00      'RH106'      !RH106

***MO99***
'MO99'           88          NG
DECAY  2.919941E+02
FROM
    FISSION      6.140546E-02      'PU241'
    FISSION      6.140545E-02      'PU239'
    FISSION      6.251621E-02      'U238'
    FISSION      6.251621E-02      'U238NF'
    FISSION      6.128369E-02      'U235'
    FISSION      4.959734E-02      'U233'

***ZR95***
'ZR95'           89          NG
DECAY  1.224810E+01 !Valeur ici donnee par livre gris
FROM
    FISSION      4.922682E-02      'PU241'
    FISSION      4.922682E-02      'PU239'
    FISSION      5.328328E-02      'U238'
    FISSION      5.328328E-02      'U238NF'
    FISSION      6.467929E-02      'U235'
    FISSION      6.255553E-02      'U233'

***NB95***
'NB95'           90          NG
DECAY  2.293460E+01 !Valeur ici donnee par livre gris
FROM

```

```

          DECAY      1.000000E+00      'ZR95'      !ZR95
*          FISSION    3.930000E-02      'PU241'      !PU241
*          FISSION    4.820000E-02      'PU239'      !PU239
*          FISSION    6.500000E-02      'U235'      !U235
***SR91***
'SR91'      91      NG
          DECAY      1.999390E+03 !Valeur ici donnee par livre gris
FROM
          FISSION    1.860000E-02      'PU241'      !PU241
          FISSION    2.490000E-02      'PU239'      !PU239
          FISSION    5.830000E-02      'U235'      !U235
          FISSION    6.500000E-02      'U233'      !U233
***Y91***
'Y91'      92      NG
          DECAY      1.371140E+01 !Valeur ici donnee par livre gris
FROM
          DECAY      1.000000E+00      'SR91'      !SR91
*          FISSION    1.860000E-02      'PU241'      !PU241
*          FISSION    2.490000E-02      'PU239'      !PU239
*          FISSION    5.830000E-02      'U235'      !U235
***ZR91***
* Faut il mettre les isotope de fin de chaine??
'ZR91'      93      NG
FROM
          DECAY      1.000000E+00      'Y91'      !Y91
***SR90***
'SR90'      94      NG
          DECAY      7.631790E-02 !Valeur ici donnee par livre gris
FROM
          FISSION    1.540000E-02      'PU241'      !PU241
          FISSION    2.100000E-02      'PU239'      !PU239
          FISSION    5.780000E-02      'U235'      !U235
          FISSION    6.800000E-02      'U233'      !U233
***Y90***
'Y90'      95      NG
          DECAY      3.004700E+02 !Valeur ici donnee par livre gris
FROM
          DECAY      1.000000E+00      'SR90'      !SR90
*          FISSION    1.540000E-02      'PU241'      !PU241
*          FISSION    2.100000E-02      'PU239'      !PU239
*          FISSION    5.780000E-02      'U235'      !U235
***ZR90***
* Faut il mettre les isotope de fin de chaine??
'ZR90'      96      NG
FROM
          DECAY      1.000000E+00      'Y90'      !Y90
***SR89***
'SR89'      97      NG

```



```

      DECAY  1.587680E+01 !Valeur ici donnee par livre gris
FROM
      FISSION  1.230000E-02  'PU241'  !PU241
      FISSION  1.720000E-02  'PU239'  !PU239
      FISSION  4.730000E-02  'U235'   !U235
      FISSION  5.970000E-02  'U233'   !U233

***Y89***
'Y89'      98      NG
FROM
      DECAY  1.000000E+00  'SR89'  !SR89
*****
** Ajout 2: actinides **
*****
'AM242'     99      NG
      DECAY  1.202623E+03
FROM
      DECAY  1.000000E+00  'AM242M'
'U232'      100     NG
      DECAY  3.190066E-02
FROM
      DECAY  1.000000E+00  'PU236'
'TH228'     101     NG
      DECAY  1.148897E+00
FROM
      DECAY  1.000000E+00  'U232'
'RA224'     102     NG
      DECAY  2.191950E+02
FROM
      DECAY  1.000000E+00  'TH228'
'RN220'     103     NG
      DECAY  1.246668E+06
FROM
      DECAY  1.000000E+00  'RA224'
'PO216'     104     NG
      DECAY  4.780325E+08
FROM
      DECAY  1.000000E+00  'RN220'
'PB212'     105     NG
      DECAY  1.809595E+03
FROM
      DECAY  1.000000E+00  'PO216'
'BI212'     106     NG
      DECAY  1.907857E+04
FROM
      DECAY  1.000000E+00  'PB212'
'PO212'     107     NG
      DECAY  2.325997E+14
FROM

```

```

          DECAY      0.641000E+00      'BI212'
'TL208'      108      NG
          DECAY      3.783968E+05
          FROM
          DECAY      0.359000E+00      'BI212'
'PB208'      109      NG
          FROM
          DECAY      1.000000E+00      'PO212'
          DECAY      1.000000E+00      'TL208'

ENDCHAIN

*****FIN MODIF*****
MIXS LIB: WIMS FIL: <<LibName>>
*cool-1
MIX 15 <<Ctemp>> <<CdensESC>>
H1 = <<IsoH1>> <<ClwgtH1IV>>
D2 = <<IsoD2>> <<ClwgtD2IV>>
O16 = <<IsoO16>> <<ClwgtO16IV>>
*cool-2
MIX 16 <<C2tempIV>> <<C2densIV>>
H1 = <<IsoH1>> <<C2wgtH1IV>>
D2 = <<IsoD2>> <<C2wgtD2IV>>
O16 = <<IsoO16>> <<C2wgtO16IV>>
*SX404
MIX 17 525.0 7.75
C 0.15 SI 0.50 P31 0.04 S 0.03
<<IsoFe54>> 4.8413 <<IsoFe56>> 78.731052
<<IsoFe57>> 1.852032 <<IsoFe58>> 0.248861
<<IsoCr50>> 0.501459 <<IsoCr52>> 10.043952
<<IsoCr53>> 1.160695 <<IsoCr54>> 0.293788
<<IsoNi58>> 0.403237 <<IsoNi60>> 0.160635
<<IsoNi61>> 0.007101 <<IsoNi62>> 0.022981
<<IsoNi64>> 0.006078
MIX 18 COMB 16 0.45 17 0.55
*ZRO2
MIX 19 574.0 5.89
<<IsoZr90PT>> 46.14 <<IsoZr91PT>> 10.17
<<IsoZr92PT>> 15.72 <<IsoZr94PT>> 16.28
<<IsoZr96PT>> 2.68
O16 = <<IsoO16>> 32.0
*cool-3
MIX 20 <<C3tempIV>> <<C3densIV>>
H1 = <<IsoH1>> <<C3wgtH1IV>>
D2 = <<IsoD2>> <<C3wgtD2IV>>
O16 = <<IsoO16>> <<C3wgtO16IV>>
MIX 21 COMB 20 0.7 19 0.3
*PT
MIX 22 373.15 6.5041
<<IsoNb>> 2.58

```

```

<<IsoFe54>> 0.00266589864 <<IsoFe56>> 0.042976786
<<IsoFe57>> 0.00100160658 <<IsoFe58>> 0.000135886544
<<IsoCr50>> 0.000337568856 <<IsoCr52>> 0.006769656
<<IsoCr53>> 0.000782319888 <<IsoCr54>> 0.000198430992
<<IsoNi58>> 0.002481955 <<IsoNi60>> 0.00098154
<<IsoNi64>> 3.6505E-05
<<IsoZr90PT>> 49.344300082 <<IsoZr91PT>> 10.880521806
<<IsoZr92PT>> 16.813671028 <<IsoZr94PT>> 17.410197266
<<IsoZr96PT>> 2.8645910062
<<IsoB10>> 0.00002431

* moder
MIX 23 <<MtempIV>> <<MdensIV>>
H1 = <<IsoH1>> <<MwgtH1IV>> D2 = <<IsoD2>> <<MwgtD2IV>>
O16 = <<IsoO16>> <<MwgtO16IV>>

* SS 304
MIX 24 775.5 7.92
C 0.08 MN55 2.0 P31 0.04 S 0.03 SI 0.75
<<IsoFe54>> 3.98385 <<IsoFe56>> 64.48175
<<IsoFe57>> 1.44372 <<IsoFe58>> 0.19068
<<IsoCr50>> 0.83 <<IsoCr52>> 15.92
<<IsoCr53>> 1.8 <<IsoCr54>> 0.45
<<IsoNi58>> 6.808 <<IsoNi60>> 2.622
<<IsoNi61>> 0.114 <<IsoNi62>> 0.363
<<IsoNi64>> 0.093

MIX 25 <<Ftemp>> <<Fdens>>
O16 = <<IsoO16>> <<FwgtO16Nat>>
U5 = <<IsoU5>> <<FwgtU5Nat>> 1
U8 = <<IsoU8>> <<FwgtU8Nat>> 1
U6 = <<IsoU6>> 0.0 1
PU9 = <<IsoPu9>> 0.0 1
PU240 0.0 1 AM241 0.0 1 PU241 0.0 1
AM242M 0.0 1 PU242 0.0 1 AM243 0.0 1

MIX 26 COMB 25 100.0
MIX 27 COMB 25 100.0
MIX 28 COMB 25 100.0

;
QUIT .

```